

UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID
FACULTAD DE CIENCIAS FÍSICAS



TESIS DOCTORAL

**Generación de texturas de espín y paredes de dominio en
nanoestructuras de óxidos correlacionados**

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTORA

PRESENTADA POR

Gloria Orfila Rodríguez

DIRECTORES

Alberto Rivera Calzada
Jacobo Santamaría Sanchez-Barriga

Madrid

Generación de texturas de espín y paredes de dominio en nanoestructuras de óxidos correlacionados

Gloria Orfila Rodríguez

Madrid 2020

Dirección

Dr. Alberto Rivera Calzada

Prof. Jacobo Santamaría Sanchez-Barriga

Departamento de Física de Materiales

Facultad de Ciencias Físicas

Universidad Complutense de Madrid



A mis padres.

*Cuando creíamos que teníamos todas las respuestas,
de pronto, cambiaron todas las preguntas.
- Mario Benedetti*

*Yo soy yo y mi circunstancia,
y si no la salvo a ella no me salvo yo.
- José Ortega y Gasset*

*No puede impedirse el viento,
pero hay que saber hacer molinos.
- El Ingenioso Hidalgo Don quijote
de la Mancha*

Agradecimientos

Recuerdo el día en que Jacobo me dio la oportunidad de hacer la tesis en su grupo. Ha llovido bastante desde aquel momento, pero aquí estamos y quiero agradecéroslo a vosotros, pues como dijo José Ortega y Gasset «*El medio no se puede separar de mi persona*».

En primer lugar quiero dar las gracias a mis directores, el Dr. Alberto Rivera y el Profesor Jacobo Santamaría por haber confiado en mí para realizar este trabajo. He aprendido muchas cosas, no solamente de ciencia, y a día de hoy soy una versión mejorada de mí misma. Alberto, gracias por todo lo que me has enseñado durante estos años, por todas las personas que me has presentado y por poner tanto empeño en todo lo que haces.

Quiero agradecer a todo el Grupo de Física de Materiales Complejos todo el conocimiento que me habéis aportado y todos los buenos momentos: Carlos León (Cerebro), Zouhair (gracias por acogerme en el IMA como una más), Norbert, Neven, Diego el colombiano y sus hormigas culonas, Rainer y su poleo menta, María Varela y sus perros, ellos también han contribuido aunque no lo sepan. David Hernández porque donde otros no ven nada, tú lo ves todo, gracias. Beltrán, gracias por tu buen humor, un salvavidas cuando hay tormenta. Fabián y Tornos, porque otro punto de vista es posible, gracias por las conversaciones sobre la vida, me llevo esto y las hierbas. Andrea, te deseo lo mejor en tu camino. A la gente del ICMMMMMMMMMMMMMMMMMMM (esto no lo entenderán ellos pero si los del GFMC): Mar García, Andrés Castellanos y Federico Mompeán, muchas gracias por tu disponibilidad para medidas y por tu amabilidad. Carmen Munuera, gracias por tu ayuda y por tu sonrisa. Gracias también a Gabi por las cervecitas en Chamberí. A Anke Sander y Javier Villegas del grupo de París, muchas gracias por todo vuestro trabajo. Gracias a Oscar de la UCLM por confiar en mí para las medidas de las cobaltitas y por supuesto, gracias a Carlos Romero por salvarnos el pellejo en incontables ocasiones.

A Lucas Pérez, porque tienes el arte de hacer sencillo lo difícil, gracias por tu implicación en todo lo que haces y por tu ilusión. Sandra Ruiz, muchas gracias por tu ayuda al final de esta tesis. Sergio Valencia, un gran científico pero mejor persona. Tengo mucho que agradecerte, por acogerme, enseñarme y por ser el responsable de que me encanten los *beamtimes*. Mirko, siempre serás mi mentor, gracias por todo y por enseñarme a cuestionar siempre lo que ven

mis ojos.

Ingrid y su gente, por estar siempre ahí y por ser quien eres desde que nos conocimos, sin tu cariño, tus palabras, los despellejamientos, las terapias fuera de hora y las risas esto habría sido una catástrofe. Laura y Nepal, por vuestro cariño y comprensión en los momentos difíciles y por las risas en los buenos. Antonio, muchas gracias por tu apoyo incondicional, tu alegría, tus 1906 y sobre todo por creer en mí, la diferencia entre tener a alguien que confíe en tí y no tenerlo. Miguel + Sugus + Qwerty + las máquinas virtuales, bonito grupo de buena gente y derivados. Marina la Baronesa, por compartir conmigo el humor más ácido de todos y demostrarme que «si se puede». Imaine, sin ti, sin tus palabras, tus discursos, nuestra conexión y por favor, sin tu vino, no habría llegado viva hasta aquí.

A mis primos Román, Carlos y Álvaro (de mayor a menor) por ser los Orfila, que aunque estemos un poco lejos os tengo muy cerca. Ana Berta (se que no te gusta que te llamen así, pero tiene que quedar claro que eres tú), eres una gran amiga y compañera de viaje. Gracias Jorge y Ana, por rescatarme cuando lo necesitaba, por entender toda mi basura y compartirla y por todos los *Hot-Pot* que nos hemos zampado (y los que vendrán). Laura A. G., un reciente descubrimiento que me guardo con mucho cariño, gracias. Celia y Lauriti, mis compis del parque de físicas, gracias por todas esas horas. Gracias Lucía (Lu) por inspirarme y por tener siempre la solución del problema, sigue pendiente el viaje a Ginebra. Paula (Pau) y Josus mis amiguitos de la uni, os quiero mucho y espero que lo sepáis.

Mariona y Ana, gracias por ser mis ojos cuando no era capaz de ver más allá, por vuestro cariño y por las horas de charleta, que pena no haber coincidido más tiempo en el laboratorio. Fer y Carol y sus gatos, gracias por vuestra amistad, hemos compartido momentos que nos han hecho más fuertes y mejores. Carol, eres un ejemplo de ilusión y alegría. Fer, claro que volveremos a Berlín a inventarnos más nombres de paradas. Gracias por hacer de todo una parodia y por tener uno de los humores más negros que he conocido. David *m.....a* (no lo escribo entero porque me matarías), cuesta conocerte pero eres una caja de sorpresas y de inspiración. Gracias por mostrarme que lo peor que puede pasar nunca es tan malo y por los buenos momentos que hemos compartido. Me quedo con el cuesquecillo. Javi Grandal, mi confidente y amigo, gracias por las eternas conversaciones y por compartir un poco de mi locura. David Maldonado, un gran descubrimiento andaluz, espero que seas muy feliz en tu nueva vida y que yo lo vea. A mis compañeros de máster (ahí empezó todo), Supercadiz, Jordi y Chema, tres grandes mentes que se harán famosas algún día.

A Mariano, David y Pibe y los pinchos de tortilla de la cafetería, habéis sido el día a día de estos años. Pedro y la gente de secretaría de físicas, sois

estupendos y siempre con una sonrisa. A la sala blanca, que le voy a contar yo a ella que no sepa, lo sabe todo de todos. Berlín, gracias por brindarme de los mejores momentos de esta tesis. París, gracias por ser la ciudad del amor. A las ovejas de Villar del Buey y a mi futuro perro, gracias por las sonrisas que me habéis regalado, os adoro.

Víctor, eres una parte fundamental de esta tesis y de la persona que soy, sin tí esto no hubiera sido posible. Gracias por todo lo que me has enseñado, sobre todo como persona. Gracias por todo tu apoyo, por tu ayuda y por quererme aún cuando me transformaba en un ser abominable.

Papá, como me hubiese gustado que vieras esto y como te hubiese gustado verlo a ti, te dedico esta tesis y todo lo demás. Mamá, gracias por creer siempre en mí, por cuidarme y por aguantarme. Te lo debo todo, gracias a ti soy quién soy.

Con mucho cariño,

Gloria.

Índice

Motivación y objetivos	1
Resumen en español	5
Resumen en inglés	7
1 Introducción a los Óxidos Complejos: Ferromagnetismo y Superconductividad	9
1.1 Óxidos de metales de transición	9
1.1.1 La manganita ferromagnética $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$	10
1.1.2 Fórmula general, estructura cristalina y distorsión <i>Jahn-Teller</i>	11
1.1.3 Interacción de doble canje (double exchange)	13
1.1.4 Propiedades intrínsecas: Fases magnéticas y anisotropía magnetocristalina	14
1.2 Espintrónica. Magnetorresistencia en LSMO	16
1.2.1 Magnetorresistencia en LSMO	17
1.2.2 Magnetorresistencia anisótropa	18
1.3 Introducción a la superconductividad	19
1.3.1 Superconductores de tipo II: estado mixto	20
1.3.2 Superconductores de alta temperatura: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$	22
1.3.3 Materia de vórtices en superconductores de alta temperatura	24
1.3.4 Dinámica de vórtices	26
1.3.5 Modelo de estado crítico de Bean	27
2 Técnicas experimentales	35
2.1 Pulverización catódica	35
2.2 Caracterización estructural y morfológica	37
2.2.1 Difracción de rayos X (XRD)	37
2.2.2 Microscopía de fuerza atómica (AFM)	41
2.2.3 Microscopía electrónica de barrido (SEM)	43
2.3 Técnicas de Nanofabricación	46
2.3.1 Proceso de Nanofabricación	46
2.4 Deposición de Metales	61

2.5	Caracterización Magnética	62
2.5.1	Microscopía de Fuerza Magnética (MFM)	62
2.5.2	Técnicas de absorción basadas en radiación sincrotrón	64
2.6	Caracterización eléctrica y de magnetotransporte	69
3	Paredes de dominio en nanohilos de LSMO	71
3.1	Introducción	71
3.1.1	Nanohilos de óxidos y espintrónica	71
3.1.2	Energía de canje	72
3.1.3	Paredes de dominio en materiales ferromagnéticos	73
3.1.4	Curva de imanación en ferromagnéticos	76
3.2	Caracterización de la fabricación de nanohilos	77
3.2.1	Caracterización estructural: difracción de rayos X	77
3.2.2	Litografía y caracterización morfológica	79
3.2.3	Caracterización eléctrica de nanohilos de LSMO	79
3.2.4	Magnetotransporte en nanohilos de LSMO	80
3.3	Diseño de paredes de dominio en nanohilos	88
3.3.1	Nanohilo de 65 nm	89
3.3.2	Nanohilo de 200 nm	91
3.4	Discusión de resultados	93
3.5	Conclusiones	95
3.6	Apéndice 1: Estudio de imágenes de XMCD en	96
3.7	Apéndice 2: Caracterización magnética: Microscopía de Fuerzas Magnéticas (MFM)	102
4	Estructuras magnéticas exóticas: FM en interacción con HTS	105
4.1	Introducción	105
4.1.1	Estado del arte y objetivo	107
4.2	Proceso de nanofabricación	109
4.3	Nanoestructuras de YBCO-FM con imanación en el plano	111
4.3.1	Capa de Py continua	111
4.3.2	Capa de Py nanoestructurado	122
4.4	Nanoestructuras de YBCO-FM con imanación perpendicular al plano	133
4.4.1	Dominios magnéticos sin superconductividad	134
4.4.2	Efecto de la superconductividad	137
4.5	Conclusiones	142
	Conclusiones generales	145
	Referencias	149
	Anexo	161

Motivación y objetivos

Motivación

Los óxidos de metales de transición son sistemas con electrones fuertemente correlacionados. En estos sistemas hay varias interacciones con energías muy similares y que compiten entre sí, como son los grados de libertad de espín, carga, red y orbital, originando distintas fases que están muy cerca en energía unas de otras. Cada fase puede tener una amplia gama de comportamientos físicos de tipo metal, semiconductor, aislante, superconductor, ferromagnético, magnetorresistivo, multiferroico, etc. Mediante perturbaciones externas se puede provocar artificialmente el cambio entre alguna de estas fases, por ejemplo con el cambio en la concentración de portadores, la nanoestructuración o la interacción con otro material en multicapas y heteroestructuras, produciendo respuestas enormes. La posibilidad de controlar esta fenomenología hace de los óxidos correlacionados unos candidatos muy atractivos para aplicaciones tecnológicas, y están llamados a desempeñar un papel protagonista en la electrónica con control de espín o espintrónica.

El desarrollo tecnológico actual implica la necesidad de aumentar las prestaciones de los dispositivos electrónicos, planteando continuos retos en su fabricación. Uno de los principales objetivos de la tecnología electrónica convencional es reducir el tamaño de los chips cada vez más, como formula Moore en 1965. Con el descubrimiento de la magnetoresistencia gigante por Albert Fert y Peter Grünberg en 1988 emerge una nueva tecnología que explota tanto la carga del electrón como su espín, la espintrónica. Un claro ejemplo de aplicación tecnológica es la memoria *Race-Track* [1], en este dispositivo se cambia el concepto que hay hasta la fecha en cuanto al movimiento de la información. En las memorias convencionales, el disco gira bajo el cabezal de memoria, mientras que en las *Race-Track memories* son los propios bits de información lo que se mueven. Un bit de información se traduce en un dominio magnético, por lo que si se consigue entender y controlar la generación y el movimiento de dominios magnéticos en los dispositivos se podrá optimizar su rendimiento y capacidad de almacenaje. Cada dominio magnético se delimita por lo que se conoce como pared de dominio magnético o *domain wall* (DW), la cual se puede manipular mediante campos magnéticos o corrientes polarizadas de espín [2–4].

Por otra parte, la investigación sobre los efectos de proximidad en los siste-

mas híbridos superconductor/ferromagnético tiene un gran interés tanto desde un punto de vista aplicado como fundamental, porque la superconductividad (SC) y el ferromagnetismo (FM) son a primera vista fenómenos antagónicos que raramente coexisten en sistemas uniformes. Mientras que la SC requiere una alineación antiparalela de los espines de los electrones de los pares de Cooper (singlete), el FM se construye a partir de su disposición paralela. La mayoría de los trabajos que aparecen en este tipo de sistemas híbridos se centran en investigar cómo las propiedades SC se ven afectadas o pueden ser manipuladas a través del campo de canje del FM [5–9]. Sin embargo, el efecto contrario, es decir, la influencia del superconductor en capas ferromagnéticas de materiales híbridos, está bastante inexplorado. Trabajos recientes, tanto teóricos como experimentales, demuestran la posibilidad de utilizar corrientes superconductoras para crear texturas de espín no triviales, con dimensiones laterales que van de la escala nano a la micro, en películas delgadas de FM [10–13].

Objetivos

El propósito de este trabajo es el estudio de efectos de espín en nanodispositivos de óxidos correlacionados de interés para su aplicación en electrónica con control del espín. Para ello se plantea un estudio basado en nanoestructuras planares de dos de los óxidos correlacionados más representativos, la manganita $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ($LSMO$) y el superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ($YBCO$).

La primera aproximación al problema es el estudio de la nucleación y manipulación de fronteras de dominio en nanoestructuras de la manganita medio metal $LSMO$. Para ello hay que optimizar la fabricación de estructuras con forma de hilos con resolución nanométrica y realizar un estudio exhaustivo del comportamiento magnético en esa misma escala nanométrica. El entendimiento de la dinámica de la pared de dominio en los nanohilos permite modificar la fabricación de los nanohilos para optimizar sus propiedades de transporte eléctrico con vistas a su aplicación tecnológica.

La segunda parte consiste en la generación de patrones de espín mediante la interacción del superconductor de alta temperatura $YBCO$ con un recubrimiento ferromagnético superior, en sistemas híbridos ferromagnético-superconductor. Se utilizan las supercorrientes del $YBCO$ generadas al apantallar un campo magnético perpendicular a la muestra para crear el patrón magnético, para ello hay que confinar las supercorrientes en diferentes estructuras (disco, cuadrado), dando lugar a diferentes texturas magnéticas. Se propone estudiar estas texturas en las tres dimensiones del espacio, analizando el patrón magnético generado en el plano mediante un FM con el eje de fácil imanación en el plano como el Py, y en la dirección perpendicular, con un recubrimiento formado por

una multicapa Co-Pt con el eje de fácil imanación perpendicular al plano de la muestra.

Resumen en español

El capítulo 1 es una introducción general sobre los óxidos fuertemente correlacionados y los materiales que se van a estudiar. Se describen los aspectos físicos que hay detrás de las manganitas en general y el *LSMO* en particular, con especial atención a los efectos de espín como la magnetorresistencia. Se introduce también la superconductividad de tipo II con el *YBCO* como ejemplo paradigmático y el modelo de estado crítico de Bean.

El capítulo 2 describe las técnicas experimentales que se utilizan en este trabajo. Se explica el crecimiento por pulverización catódica o *sputtering*, el análisis estructural de las muestras con difracción de rayos X, el análisis morfológico con microscopía de fuerzas atómicas (*AFM*) y de magnetotransporte en criostato de ciclo cerrado de He. Por su importancia, se desarrolla el proceso de fabricación de nanoestructuras con litografía por haz de electrones, el ataque y la deposición de contactos metálicos con litografía óptica. Finalmente se detallan las dos técnicas de caracterización magnética en la escala nanométrica utilizadas, las imágenes de dicroísmo circular magnético (*XMCD*) en el microscopio de fotoemisión de electrones (*PEEM*) y el microscopio de fuerzas magnéticas (*MFM*).

En el capítulo 3 se describe el estudio de la nucleación y manipulación de paredes de dominio en nanohilos de *LSMO* diseñados para tener una región donde compiten diferentes anisotropías de forma. Se explican los detalles particulares de la fabricación, y se hace un amplio estudio magnético y de transporte de los dispositivos, que permite entender la formación y el movimiento de las paredes de dominio de 180° al invertir el campo. Se fabrican nanodispositivos diseñados para modificar la dinámica de las paredes, consiguiendo mejorar su magnetorresistencia para su aplicación práctica.

El capítulo 4 consiste en el estudio de texturas magnéticas generadas por la interacción de las corrientes superconductoras en un material ferromagnético adyacente. Se dan los detalles del proceso de fabricación de las estructuras superconductoras y el posterior recubrimiento magnético, y se describe el estudio magnético de las texturas de espín generadas. Aparece en el plano un patrón característico que es sorprendentemente robusto cuando la capa ferromagnética se limita a la estructura superconductora y sobrevive hasta temperatura ambiente. En la dirección perpendicular al plano, el campo del superconductor genera una nucleación preferente de las paredes de dominio en los bordes de

la estructura superconductora, y una propagación hacia el centro que crea una variación del campo coercitivo del ferromagnético dependiendo de la posición en el plano.

En el capítulo 5 se hace un resumen de las principales conclusiones de este trabajo.

Resumen en inglés

Chapter 1 is a general introduction to the strongly correlated oxides and materials to be studied. The physical aspects behind manganites in general and *LSMO* in particular are described, with particular attention to spin effects such as magnetoresistance. Type II superconductivity is also introduced with the *YBCO* as a paradigmatic example and Bean's critical state model.

Chapter 2 describes the experimental techniques used in this work. The growth by sputtering, the structural analysis of the samples with X-ray diffraction, the morphological analysis with *AFM* and the magnetotransport analysis in closed-cycle He cryostat are explained. Due to its importance, the fabrication process of nanostructures with electron beam lithography, etching and contact deposition with optical lithography is developed. Finally, the two magnetic characterization techniques at the nanometric scale used are detailed, the magnetic circular dichroism images (*XMCD*) in the photoelectron emission microscope (*PEEM*) and the *MFM*.

Chapter 3 describes the study of the nucleation and manipulation of domain walls in *LSMO* manganite nanowires designed to have a region where different shape anisotropies compete. The particular details of fabrication are explained, and an extensive magnetic and transport study of the devices is made, which allows the formation and movement of the 180° domain walls to be understood by inverting the field. Nanodevices designed to modify the dynamics of the walls are fabricated, thus improving their magnetoresistance for technological application.

Chapter 4 consists of the study of magnetic textures generated by the interaction of superconducting currents in an adjacent ferromagnetic material. Details of the fabrication process of the superconducting structures and the subsequent magnetic coating are given, and the magnetic study of the generated spin textures is described. A characteristic pattern appears in the plane that is surprisingly robust when the ferromagnetic layer is limited to the superconducting structure and survives at room temperature. In the direction perpendicular to the plane, the field of the superconductor generates a preferential nucleation of the domain walls at the edges of the superconducting structure, and a propagation towards the centre that creates a variation of the coercive field of the ferromagnetic with the position.

Chapter 5 summarizes the main conclusions of this work.

1 Introducción a los Óxidos Complejos: Ferromagnetismo y Superconductividad

1.1. Óxidos de metales de transición

Los óxidos de metales de transición (*TMO*) son compuestos que combinan el oxígeno con elementos cuyo número atómico se encuentra entre el 22 y el 29 (Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu). Estos materiales son sistemas con electrones fuertemente correlacionados. En los semiconductores convencionales los electrones atraviesan la red cristalina sin apenas interactuar con los demás portadores. Según la teoría de bandas, los niveles de energía se van llenando de acuerdo a la distribución de Fermi-Dirac. Al añadir nuevos electrones al sistema, estos no modifican las bandas, simplemente las van llenando. Por tanto, el estado del sistema se describe en términos de estados de las partículas individualmente. Se dice entonces, que este modelo es de bandas rígidas, *tight-binding*. Esta teoría no ofrece buenos resultados cuando la energía de interacción entre electrones es comparable a la energía cinética. En estos sistemas en los que los portadores interactúan o están correlacionados, cada vez que se añade un nuevo electrón, no solamente se llenan los niveles de energía, sino que estos también se modifican y las bandas ya no son rígidas. Los *TMO* pertenecen a este tipo de sistemas y, por tanto, se llaman a veces simplemente óxidos correlacionados. La energía de repulsión entre electrones puede llegar a ser tan fuerte que los electrones se encuentren muy localizados, como es el caso de los sistemas de electrones 3d. Por ejemplo, en el caso de átomos con un electrón en un único orbital disponible, si efectivamente los electrones están fuertemente correlacionados estabilizan un estado aislante que se denomina de Mott-Hubbard. Según la teoría de bandas, al estar todos los orbitales atómicos medio llenos, el material debería ser metálico, pero experimentalmente resulta ser un aislante (aislante de Mott). Además el principio de exclusión de Pauli impone un estado fundamental antiferromagnético para maximizar la probabilidad de túnel entre primeros vecinos. Al dopar un material con estas características, por ejemplo con huecos, los orbitales dejarán de estar medio llenos y la repulsión coulombiana entre ellos dejará de penalizar el transporte dando lugar a una transición aislante-metal, que permitirá el movimiento de las cargas. Se

evidencia entonces que la densidad de carga es un parámetro crítico en estos materiales, por lo que uno de los requisitos esenciales en la fabricación de estos óxidos es el control del dopaje. Por tanto, la fabricación de óxidos complejos requiere de un control extremo de la concentración de portadores para obtener las propiedades esperadas y su variación mediante dopaje es fundamental ya que permite, entre otras cosas, realizar transiciones metal-aislante.

Quizás la característica más importante de los *TMO* es la existencia de varias interacciones con energías muy similares y que compiten entre sí, lo cual origina complicados diagramas de fase, como por ejemplo el de la Fig. 1.1 [14]. La complejidad en estos materiales aparece entonces como consecuencia de la interacción entre los grados de libertad de espín, carga, red y orbital, que se dan simultáneamente. Muchas de estas diferentes fases están muy cerca en energía, lo que origina respuestas muy grandes a pequeñas perturbaciones. Estas características hacen que los *TMO* sean materiales muy interesantes [15–18], y dan lugar a una amplia gama de fenómenos físicos en ellos: comportamiento metal, semiconductor, aislante, superconductor, ferromagnético, magnetorresistivo, multiferroico, etc., que los convierten en los candidatos perfectos para aplicaciones en electrónica y espintrónica.

El progreso en las técnicas de deposición de película delgada (por pulverización catódica o *sputtering*, ablación láser o *PLD*, epitaxia de haz molecular o *MBE* por sus siglas en inglés, etc) en las últimas décadas hace posible crecer capas delgadas de *TMO* de forma epitaxial sobre diferentes sustratos, con una excelente calidad cristalina. Más importante aún, es posible combinar diferentes materiales en una sola heteroestructura manteniendo la calidad cristalina, y con una intercara atómicamente abrupta. Este control vertical a escala atómica de los *TMO* no va acompañado del mismo control en la fabricación de estructuras planares, que permita el diseño de nueva física al confinarlos lateralmente en escalas nanométricas. La gran sensibilidad de los óxidos correlacionados a pequeñas perturbaciones es, en este caso, un desafío que complica el diseño y fabricación de nanodispositivos mediante procesos de litografía que pueden llegar a ser suficientemente agresivos como para modificar sus propiedades. Por tanto, el propósito de este trabajo es el estudio de nanoestructuras planares de algunos de los óxidos correlacionados más representativos, induciendo la aparición de nueva fenomenología respecto a los mismos materiales en volumen o *bulk*.

1.1.1. La manganita ferromagnética $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$

Las manganitas pertenecen a los llamados sistemas electrónicos fuertemente correlacionados. Los distintos grados de libertad del sistema, carga, parámetro de red, espín y orbital electrónico están altamente acoplados entre sí, lo que genera que estos materiales presenten una variedad de fases muy amplia. Por

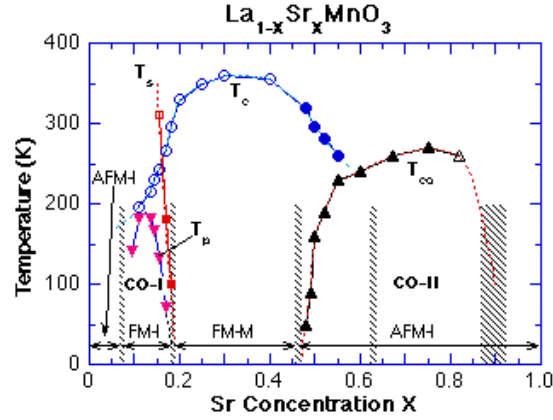


Figura 1.1: Diagrama de fases en función del dopado con huecos para la manganita *LSMO* [20].

otra parte, los electrones d de los iones de metales de transición juegan un papel muy importante ya que experimentan de manera simultánea la hibridación de los orbitales p del oxígeno, la cual tiende a deslocalizar los electrones y la fuerza de repulsión coulombiana, que por el contrario, propicia la localización de los electrones en la red cristalina [19].

Por lo tanto, el dopaje y el orden intrínseco determina las propiedades magnéticas y eléctricas de las manganitas y da lugar a una amplia variedad de fases. En 1955 se observa para $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ (*LCMO*) un diagrama de fases en función del porcentaje de dopado con huecos (Fig. 1.1). Esto lo consiguen Wollan y Koehler mediante difracción de neutrones, la cual muestra una gran variedad de fases, distinto orden de carga y distintas estructuras magnéticas [21].

La causa de esta variedad de fases proviene de las fuertes correlaciones entre la fracción de Mn^{3+} y Mn^{4+} y la estructura cristalina. A partir de los diagramas de fase es posible determinar la temperatura de Curie de las manganitas $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ y $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, siendo respectivamente 270 K y 360 K.

1.1.2. Fórmula general, estructura cristalina y distorsión Jahn-Teller

Las manganitas tienen una estructura cristalina de perovskita con una fórmula $\text{T}_{1-x}\text{D}_x\text{MnO}_3$ donde T es un ión trivalente que proviene de tierras raras como La, Pr y Nd y D es un ión alcalino divalente como Ca, Sr, Ba y Pb (Fig. 1.2). Se puede simplificar la anterior fórmula como ABO_3 como muestra la Fig. 1.2, donde A y B son cationes, O es el anión de oxígeno que los une y B es un catión de Manganese.

En el caso particular de las manganitas *LCMO* y *LSMO* los vértices del cubo están ocupados por átomos de Mn mientras que los iones La y Ca ocupan

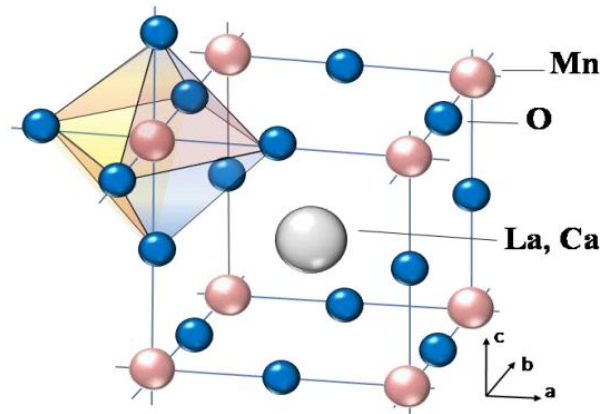


Figura 1.2: Estructura cristalina ideal de manganitas *LCMO* y *LSMO* [22].

la posición central del cubo. La estequiometría nominal se respeta a lo largo de todo el cristal. El átomo de Mn se rodea de un octaedro de oxígenos y la configuración de los electrones de la última capa es $3d^4$.

Como se explica al principio de este apartado, los iones alcalinos divalentes pueden ser de distintos tipos y por tanto, de distintos tamaños. Esta distinción de tamaños de los cationes hace que los octaedros de oxígeno se deformen debido a una distorsión de la estructura cúbica, esto es lo que se conoce como efecto *Jahn-Teller* (*JT*). Debido a la presencia de los iones de oxígeno el sistema minimiza su energía desdoblándose sus niveles energéticos: los 5 orbitales $3d$ del Mn se dividen en dos grupos e_g y t_{2g} que están doble y triplemente degenerados

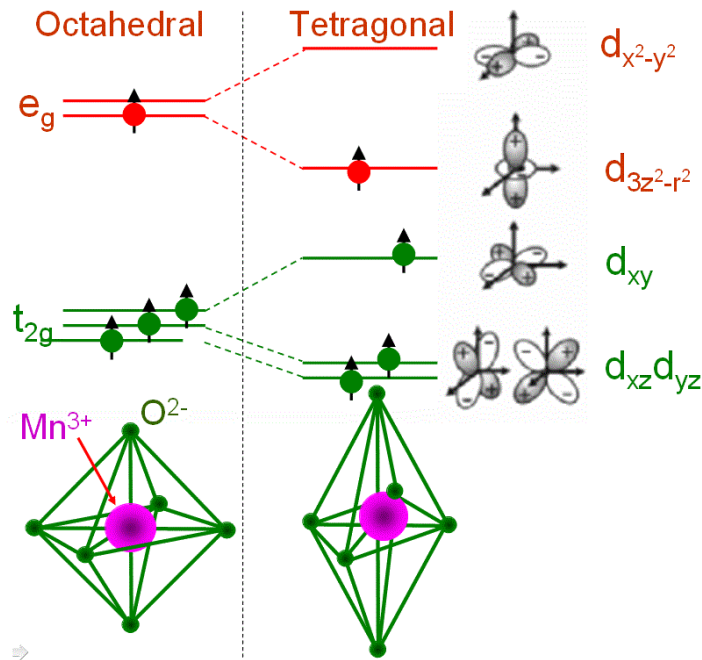


Figura 1.3: Esquema del desdoblamiento de los niveles $3d$ del ion de Mn^{3+} por efecto del campo cristalino (e_g , t_{2g}) y de la distorsión *Jahn-Teller* [23].

respectivamente. La distorsión JT da lugar por una parte al desdoblamiento del orbital e_g en dos dobletes d_z^2 y $d_{x^2-y^2}$ y por otra parte el orbital t_{2g} genera tres tripletes de energía menor d_{xy} , d_{yz} y d_{xz} (Fig. 1.3).

Los orbitales e_g están orientados hacia los oxígenos vecinos y los orbitales t_{2g} tienen nodos en estas direcciones lo que implica que los orbitales e_g pueden mezclarse con orbitales p de los oxígenos. El campo cristalino que se crea entre los niveles e_g y t_{2g} es aproximadamente de 1 eV.

Los electrones en las capas $3d$ incompletas están correlacionados de forma que su espín es máximo [24], es decir, a consecuencia de las reglas de acoplamiento de Hund y la repulsión electrostática los tres electrones de la capa $3d$ del Mn^{4+} tienen sus espines alineados en el nivel t_{2g} dando lugar a $S = 3/2$. En cambio, en el caso del Mn^{3+} el electrón adicional no ocupa un nivel t_{2g} debido a la fuerte repulsión de Coulomb y al principio de exclusión de Pauli, por lo que ocupa un nivel e_g . Sin embargo las reglas de Hund hacen que el espín de este electrón adicional se alinee con el triplete t_{2g} y forme $S = 2$.

1.1.3. Interacción de doble canje (double exchange)

El caso general $LaMnO_3$ es un compuesto sin dopar cuyo nivel de Fermi se encuentra en la mitad de los dos niveles e_g que se originan por el efecto JT . La distorsión JT afecta directamente a la anchura de banda $W = 2zt$ donde t es la integral de transferencia y z el número de Mn primeros vecinos. Si se presta atención a las manganitas $La_{1-x}Ca_xMnO_3$ y $La_{1-x}Sr_xMnO_3$, el Ca y el Sr actúan como elementos dopantes (huecos) introduciendo iones Mn^{3+} y Mn^{4+} . Como consecuencia se produce una disminución de la distorsión JT , la cual es responsable de cambios en el estado metálico y el estado magnético de estos compuestos. Por tanto, si se varía el nivel de dopado de huecos se puede obtener las distintas fases del diagrama de la Fig. 1.1, así por ejemplo, consiguiendo un valor $x = 0.5$ se obtiene una fase ferromagnética-metálica resultado de una estructura perovskita estable. La fase metálica es debida a la interacción de doble-canje [24] que consiste a grandes rasgos en un intercambio o "salto" de dos electrones entre iones vecinos Mn^{3+} y Mn^{4+} mediado por un ion de oxígeno. Por otra parte, el modelo de Hund establece que los espines de los electrones que se intercambien deben ser paralelos entre si, por lo que en una situación ideal el ángulo entre dichos espines es cero y la intensidad del proceso de intercambio es máxima. Si el ángulo es distinto de cero, la integral de transferencia se define como $t = t_0 \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)$ (Fig. 1.4). El ángulo θ también viene determinado por la temperatura, por encima de la temperatura de Curie (T_{Curie}) los espines se encuentran desordenados, mientras que para temperaturas inferiores a la T_{Curie} los espines se pueden orientar de forma paralela simplemente aplicando un campo magnético externo. Por tanto, variando la temperatura se puede pasar de una fase paramagnética-aislante a una fase ferromagnética-metálica.

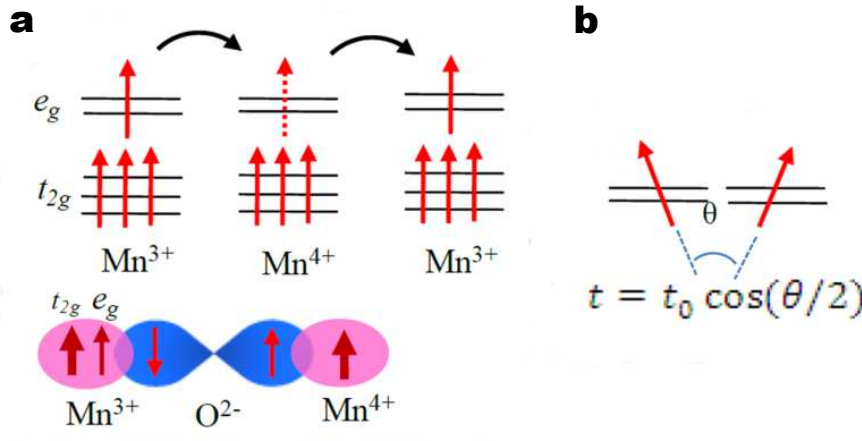


Figura 1.4: (a) Representación esquemática del mecanismo doble-canje. (b) Ilustración de la dependencia de la integral de transferencia con el ángulo θ [22].

Por otra parte la anchura de banda W de los niveles se ve afectada por la distancia de los enlaces Mn-O y por el ángulo de los enlaces Mn-O-Mn, que en el caso del *LCMO* da lugar a un ancho de banda intermedio y en el *LSMO* un ancho de banda más extenso. Esto se traduce en un ferromagnetismo robusto y una magnetorresistencia colosal (*CMR*) alta del *LCMO* frente a un ferromagnetismo robusto a temperatura ambiente pero una *CMR* baja del *LSMO*.

Los compuestos *LCMO* y *LSMO* se pueden considerar medio metales ya que presentan una polarización de espín prácticamente del 100%: los electrones de conducción en el nivel de Fermi están polarizados al 100 % a baja temperatura. Esto se debe a que el acoplamiento de Hund hace que los espines localizados estén alineados en un sentido concreto, por ejemplo *up* (\uparrow) facilitando el proceso de conducción, mientras que la conducción por espines *down* (\downarrow) está prohibida [25,26]. En el caso concreto del compuesto *LSMO*, el comportamiento ferromagnético se mantiene por encima de la temperatura ambiente ($T_{\text{Curie}} \approx 300$ K) y hace que sea ampliamente utilizado [27–29].

1.1.4. Propiedades intrínsecas: Fases magnéticas y anisotropía magnetocristalina

Las dos fases magnéticas que presentan las manganitas son ferromagnetismo (*FM*) y antiferromagnetismo aislante (*AF-I*) que se mezclan en un rango de temperaturas $T_{\text{Curie}} < T < T_{\text{Neel}}$. En la Fig. 1.5 se observa un modelo teórico de la representación de la mezcla de fases magnéticas [14].

Diferentes estudios teóricos [15,30,31] y experimentales [32–40] apoyan esta teoría. El estado fundamental de estos compuestos se compone de una mezcla

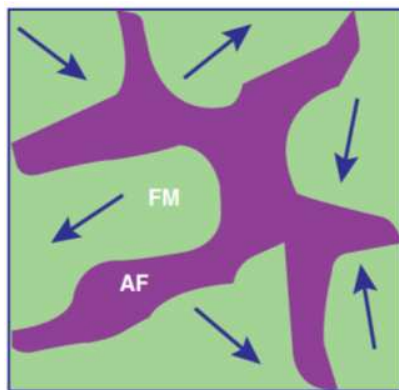


Figura 1.5: Esquema de la coexistencia de de regiones ferromagnéticas (FM) y antiferromagnéticas (AF) en las manganitas. Los clusters FM tienen orientaciones aleatorias y están separados por regiones AF [14].

de fases magnéticas en la nanoescala, lo cual es la base de la magnetorresistencia colosal.

Si, por ejemplo se presenta una perturbación magnética externa se favorecerá la alineación de los clústeres FM existentes y esto dará lugar a una respuesta ferromagnética colectiva. Hay que considerar que estos compuestos tienen un fuerte acoplamiento entre los orbitales atómicos y la red cristalina (interacción espín-órbita), por lo que el campo magnético externo reorientará los espines asociados a los electrones solamente cuando la energía del sistema sea mayor que la energía del acoplamiento espín-órbita. Esto es lo que se conoce como anisotropía cristalina, la cual depende muy fuertemente de la dirección cristalina del material. Para el caso concreto del *LCMO* la anisotropía magnética está íntimamente relacionada con el *strain* de la red, el espesor del material, el nivel de dopado, etc. Teniendo en cuenta la dirección cristalina del material y la dirección en la que se aplica el campo magnético se obtienen unos ciclos de histéresis que pueden describirse mediante el modelo de Stoner y Wohlfarth [41]. Este modelo se utiliza como referencia para identificar el eje fácil en el plano de películas delgadas de material magnético. La Fig. 1.6 representa el modelo para una partícula esferoidal individual donde los ciclos de histéresis corresponden a aleaciones heterogéneas. Al comparar los ciclos de histéresis a 45° con lo de 0° se puede observar que tanto el campo coercitivo como la remanencia son menores en el primer caso.

Es importante prestar atención a la anisotropía cristalina en películas delgadas. Para el *LSMO* en su forma masiva o *bulk*, el eje fácil del sistema se corresponde con el eje cristalino [111], pero cuando el material se reduce a unos cuantos nanómetros de espesor en forma de película delgada el eje fácil pasa a ser una proyección del eje fácil del *bulk* siendo esta la dirección [110]. Un nuevo factor a considerar en el caso de las películas delgadas es el desacoplo del parámetro de red con el sustrato. Esto abre la puerta a la posibilidad de modu-

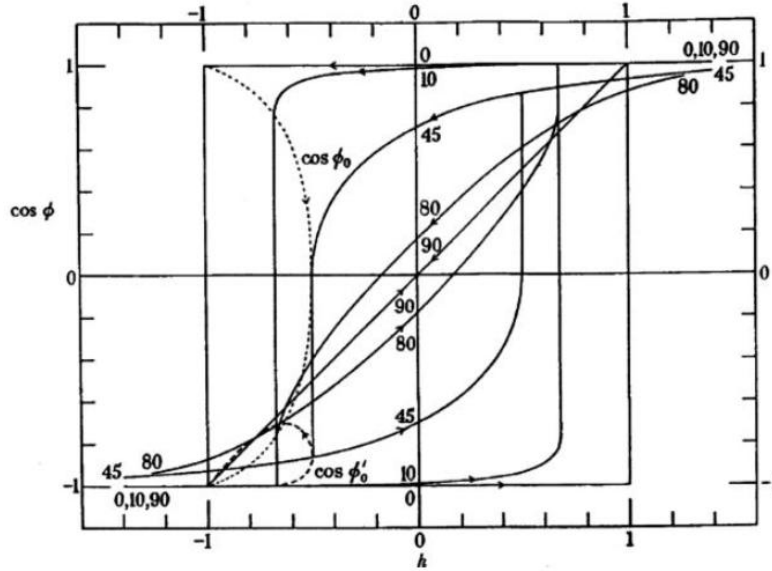


Figura 1.6: Modelo de Stoner y Wohlfarth para calcular ciclos de histéresis de esferas deformadas [41].

lar la anisotropía magnética en películas delgadas de manganitas introduciendo estructuras artificiales en el sustrato. Muchos autores consideran técnicas de modulación como por ejemplo orientar los dominios magnéticos a lo largo de escalones inducidos por cortes irregulares en la superficie del sustrato [42]. En el caso concreto $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ (*LSMO/STO*) estudios demuestran la posibilidad de introducir a temperatura ambiente una imanación uniaxial a lo largo de los bordes de los escalones del sustrato [43]. Si se reduce la temperatura la anisotropía *LSMO/STO* pasa a ser biaxial con ejes fácil y difícil a lo largo de las direcciones (110) y (100) respectivamente.

1.2. Espintrónica. Magnetorresistencia en LSMO

Para comprender en detalle los fenómenos de magnetorresistencia en materiales ferromagnéticos es necesario estudiar el comportamiento del espín del electrón. El espín se puede considerar como un imán muy pequeño que es capaz de orientarse en distintas direcciones. Así nace la espintrónica: electrónica de espín que estudia y utiliza la carga y el espín de los electrones. Este concepto se propone por primera vez en materiales ferromagnéticos por Mott [44].

A diferencia de los metales normales que tienen igual número de espines *up* (espín hacia arriba) y *down* (espín hacia abajo) en el nivel de Fermi, los materiales ferromagnéticos poseen más estados para una dirección de espín que para la otra. Por tanto, para estos materiales, la banda de energía se divide en las direcciones de espín *up* y espín *down*, lo cual provoca distintos estados de los electrones en el nivel de Fermi dependiendo de su orientación

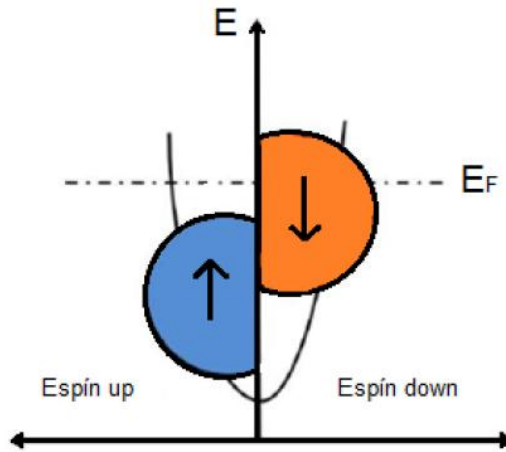


Figura 1.7: Esquema de la estructura de banda para un metal ferromagnético. La banda de energía se divide para espines *up* y *down* [45].

(Fig. 1.7). Como consecuencia, los distintos estados electrónicos hacen que los electrones muestren propiedades de conductividad diferentes para cada canal de espín. Como consecuencia los materiales ferromagnéticos pueden actuar como polarizadores de espín.

1.2.1. Magnetorresistencia en LSMO

Desde que Volger en los años 50 realiza medidas de magnetorresistencia (*MR*) de la manganita $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ obteniendo solamente un cambio de resistencia del 10 %, el interés en estos compuestos se va perdiendo [46]. La magnetorresistencia (*MR*) se define como

$$MR(H) = \frac{R(H) - R(0)}{R(0)} \quad (1.1)$$

donde H es el campo magnético, $R(H)$ es la resistencia eléctrica de la muestra en presencia del campo magnético y $R(0)$ es la resistencia eléctrica de la muestra sin campo magnético. Ahora bien, hay distintos tipos de *MR*: magnetorresistencia (*MR*), magnetorresistencia anisótropa (*AMR*), magnetorresistencia gigante (*GMR*) y magnetorresistencia colosal (*CMR*).

Debido a su alta polarización de espín y su alta temperatura de Curie ($T_{\text{Curie}} = 360 \text{ K}$), el *LSMO* es muy prometedor para gran número de aplicaciones [26, 47, 48]. Cerca de la temperatura de Curie, *LSMO* presenta *CMR* la cual se observa por primera vez en manganitas dopadas en 1994 [32, 49–53]. Este fenómeno es intrínseco y se observa a valores altos de campo magnético (del orden de 10^4 oersted), lo cual limita posibles aplicaciones en dispositivos de

espintrónica. Por otra parte, a valores de campo algo más bajos (del orden de 10^3 oersted), los efectos de *MR* se conocen como magnetorresistencia de campo bajo (*LFMR* por siglas en inglés). Por tanto, *LFMR* se puede incluir en aplicaciones tecnológicas como sensores magnéticos. En películas epitaxiales de *LSMO*, la *LFMR* intrínseca es relativamente pequeña comparada con otros materiales ferromagnéticos [54, 55].

1.2.2. Magnetorresistencia anisótropa

La magnetorresistencia anisótropa (*AMR* por sus siglas en inglés) es la diferencia de resistencia determinada por la orientación relativa entre la magnetización y la densidad de corriente. La *AMR* se descubre en 1856 por Thomson y desde ese momento es objeto de interés teórico y experimental [56], por ejemplo, en películas de metales de transición se utiliza para fabricar dispositivos magnéticos como cabezas magnéticas y sensores. Por otra parte, el efecto Hall planar, fenómeno que proviene de la *AMR* en manganitas de *CMR*, es la base para dispositivos de almacenamiento no volátil como memorias magnéticas de acceso aleatorio (*MRAM* por sus siglas en inglés). El estudio de la magnetorresistencia anisótropa ayuda a comprender como se relaciona a otras propiedades fundamentales como la anisotropía magnetocristalina y la interacción espín órbita en materiales magnéticos.

En aleaciones ferromagnéticas, la *AMR* tiene su origen en la interacción espín órbita. Esto hace que el ratio de *scattering* de los electrones de la banda *s* de conducción dependa del ángulo entre la dirección de la corriente y la dirección del espín de los electrones localizados *3d* [57]. Basándose en el modelo de los dos canales de Mott, se escriben numerosos trabajos teóricos de *AMR* en aleaciones ferromagnéticas [58, 59]. Estos estudios sostienen que por encima de la temperatura de Curie *AMR* tiende a cero, mientras que se observa una disminución aproximadamente lineal con el descenso de la temperatura, saturando a baja temperatura. Además, a valores bajos de campo magnético, *AMR* presenta un cambio monótono que satura a campos altos. En el caso de películas delgadas de manganitas del tipo $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ se observa que *AMR* depende de la uniformidad local. La no uniformidad local aumenta *AMR* ya que se incrementa el *scattering* dependiente de espín, por tanto, el incremento de la magnetización tiene dos efectos que compiten entre sí: incrementa la polarización de espín (aumenta *AMR*) e incrementa la uniformidad (disminuye *AMR*). Como consecuencia, *AMR* tiene una fuerte dependencia con el campo magnético, la temperatura y el nivel de dopado [60].

1.3. Introducción a la superconductividad

En 1911 en Leiden (Holanda) Kamerling Onnes descubre la superconductividad. Observa una caída de la resistencia del mercurio a cero al alcanzar 4.15 K convirtiendo el material en superconductor. La temperatura a la cual los materiales superconductores experimentan la transición normal-superconductor se conoce como temperatura crítica T_c . De acuerdo con la teoría microscópica de Bardeen, Cooper y Schiffer propuesta en 1957 (teoría *BCS*), en el estado superconductor los electrones se ligan en pares de electrones de espín opuesto llamados pares de Cooper los cuales se comportan como bosones formando un condensado y no responden al principio de exclusión de Pauli [61]. Los pares de Cooper se unen mediante una interacción débil electrón-fonón y su movimiento no disipa energía por lo cual, el sistema se comporta como un superfluido. En este estado la corriente eléctrica se transporta mediante los pares de Cooper.

En 1933 Meissner y Ochsenfeld descubren otra propiedad muy importante de los superconductores: a temperaturas por debajo de la T_c el superconductor expulsa el flujo magnético de su interior. Un superconductor se puede considerar como un conductor perfecto, sin embargo hay una diferencia cuando se encuentra en presencia de un campo magnético. En el interior de un conductor perfecto el campo magnético se mantiene constante sin importar las fluctuaciones del campo magnético aplicado. Esto se puede explicar en términos de resistividad. En un conductor perfecto la resistividad es cero y de acuerdo con la ley de Ohm: $\vec{E} = \rho \vec{J} \Rightarrow \vec{E} = 0$, donde \vec{E} es el campo eléctrico y \vec{J} la densidad de corriente eléctrica. Si esto se lleva a la ecuación de Maxwell de la Ley de Faraday se obtiene un campo magnético constante:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0 \Rightarrow \vec{B} = cte \quad (1.2)$$

En comparación, un superconductor en presencia de un campo magnético actúa como un material diamagnético perfecto: genera un campo magnético interno de igual magnitud pero de signo opuesto al campo magnético aplicado. La suma de ambos campos resulta en un campo magnético nulo en el interior del superconductor. Este fenómeno se conoce como efecto Meissner-Ochsenfeld: el campo magnético interno que se opone al campo magnético aplicado se genera por la existencia de supercorrientes que circulan por una fina capa de la superficie del material superconductor. La dimensión de la capa superficial es la longitud de penetración de Ginzburg-Landau $\lambda(T)$, sobre la cual el campo magnético total decae a cero exponencialmente. De forma análoga, el estado superconductor aparece en el borde del material en una fina capa en la cual la densidad de pares de Cooper n_s crece también de manera exponencial, sobre una distancia llamada longitud de coherencia de Ginzburg-Landau $\xi(T)$.

Estas dos longitudes características λ y ξ determinan las propiedades del superconductor y son los parámetros de los que depende la energía de superficie de la frontera normal-superconductor. Por una parte, el campo magnético decae en una distancia λ y cuanto más pequeña es esta distancia mayor es la energía diamagnética necesaria para expulsar el campo. Por otra parte, la densidad de pares de Cooper decae en una distancia ξ y cuanto más larga sea esta mayor es la pérdida de energía de condensación superconductora. De la relación entre los dos parámetros se define $\kappa = \lambda/\xi$, parámetro del cual depende el signo de la energía de superficie y que distingue entre superconductores de tipo I y tipo II (Fig. 1.8). Tipo I: $\kappa < 1/\sqrt{2}$, la energía de superficie es positiva y no es favorable la creación de la frontera normal-superconductor energéticamente hablando, por tanto, el campo magnético se expulsa del interior del superconductor. Tipo II: $\kappa > 1/\sqrt{2}$, la energía de superficie negativa se crea la frontera que separa el estado normal del estado superconductor y el material permite que el campo magnético penetre en algunas regiones.

1.3.1. Superconductores de tipo II: estado mixto

Los superconductores se pueden clasificar en función de cómo penetra el campo magnético en los mismos. A cierto valor de campo magnético, llamado campo crítico H_c en los superconductores de tipo I se distinguen dos estados: para campos aplicados menores que H_c , el flujo magnético no entra dentro del material (estado Meissner) y para campos externos mayores que H_c la superconductividad desaparece y el material pasa al estado normal. En el caso de los superconductores de tipo II aparece un estado intermedio para valores de campo comprendidos entre H_{c1} y H_{c2} . En esta región, llamada estado mixto, el campo magnético penetra en forma de líneas de flujo cuantizado que se

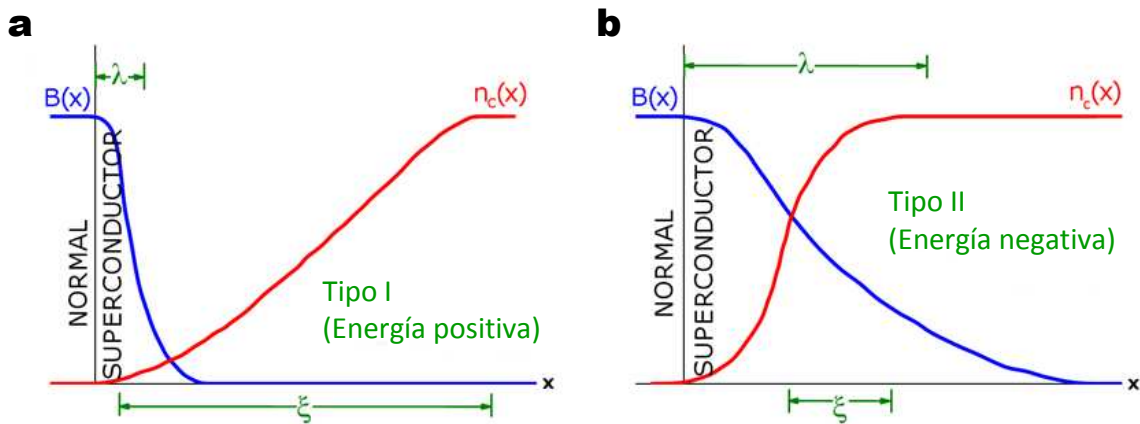


Figura 1.8: Representación esquemática de la variación de campo magnético B y de la densidad de pares de Cooper n_s en una frontera normal-superconductor. $\kappa < 1/\sqrt{2}$ y $\kappa > 1/\sqrt{2}$ corresponden a superconductor de tipo I (a) y tipo II (b) respectivamente.

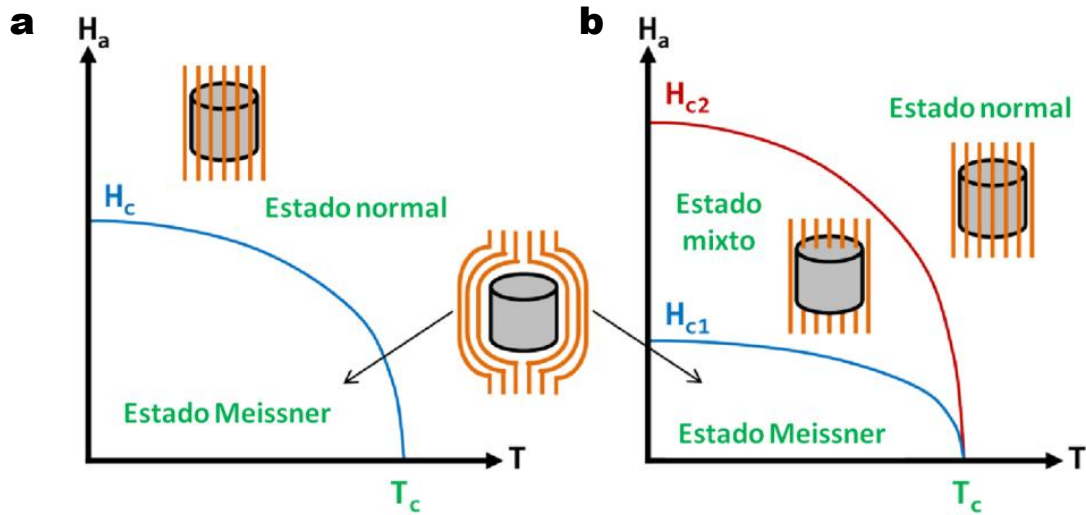


Figura 1.9: Diagrama de fases Campo magnético vs Temperatura para un material superconductor de tipo-I (a) y de tipo-II (b).

conocen como vórtices (Fig. 1.9).

Un vórtice posee un núcleo de radio ξ donde la densidad de pares de Cooper es nula. Alrededor del núcleo se encuentra una zona de radio λ , mayor que ξ , en la cual fluyen corrientes superconductoras que generan un cuanto de flujo o fluxoide de valor $\Phi_0 = 2,07 \cdot 10^{-15} \text{ T/m}^2$. En la Fig. 1.10-a se representa un esquema de un vórtice y el comportamiento del campo magnético y la densidad de pares de Cooper en función de la distancia al centro del vórtice.

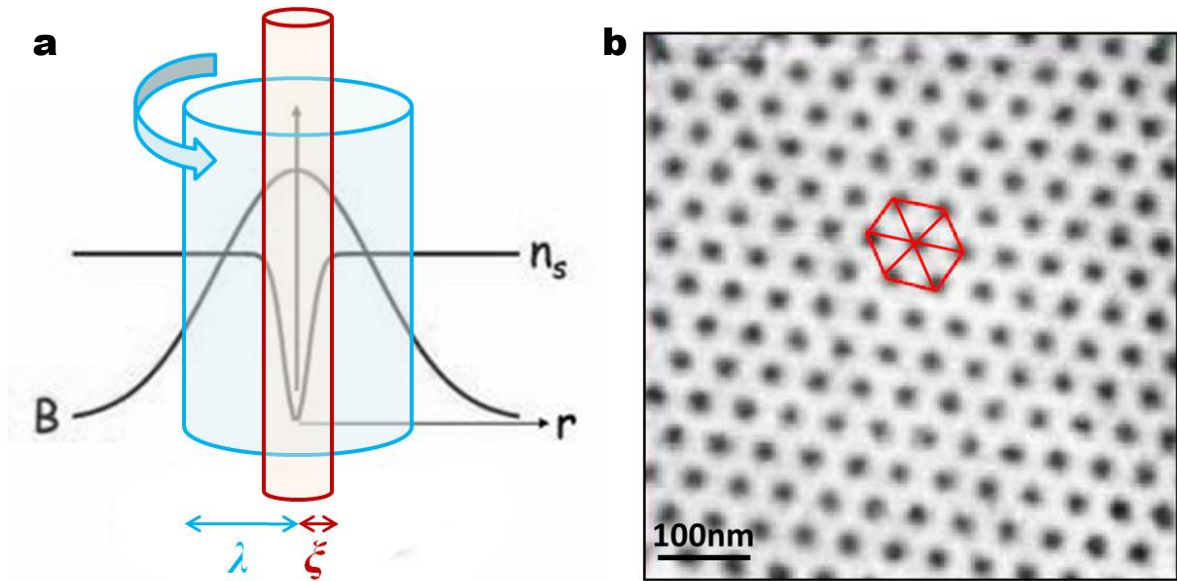


Figura 1.10: (a) Esquema de un vórtice con supercorrientes alrededor de un núcleo normal. (b) Imagen de microscopía túnel de barrido de un superconductor de tipo II. La imagen muestra una red hexagonal [62].

Para minimizar la energía en el sistema y en ausencia de defectos, los vórtices se disponen en forma de matriz formando una red triangular o hexagonal que se conoce como red de Abrikosov (Fig. 1.10-b).

Los superconductores se pueden clasificar también en función de su temperatura crítica distinguiendo entre superconductores de baja temperatura (*LTS* por sus siglas en inglés) y superconductores de alta temperatura (*HTS*). Para los superconductores convencionales *LTS* los portadores de carga están unidos por interacción electrón - fonón y responden a la teoría *BCS*. Sin embargo, en el caso de los *HTS*, la energía térmica a alta T rompería los pares de Cooper de acuerdo con la teoría *BCS* y se necesita otro mecanismo para explicar su formación. Desde el descubrimiento del primer superconductor de alta temperatura en 1986, $(\text{La}, \text{Ba})_2\text{Cu}_4$ con $T_c = 37 \text{ K}$ [63], la búsqueda del origen de la interacción de carga en *HTS* es uno de los principales temas de investigación y aunque se han propuesto muchas teorías, la formación de pares de Cooper sigue sin poder explicarse en *HTS*.

1.3.2. Superconductores de alta temperatura: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$

El descubrimiento de los superconductores de alta temperatura por Bednorz y Müller abre la puerta a las aplicaciones de la superconductividad ya que enfriar a temperaturas criogénicas es uno de los factores críticos a la hora de usar superconductores. Los *HTS* son mayormente cupratos cerámicos con temperaturas de transición cerca de 100 K y hasta ahora, todos los que se han descubierto son de tipo II, lo que significa que hay presencia de vórtices en su diagrama de fases.

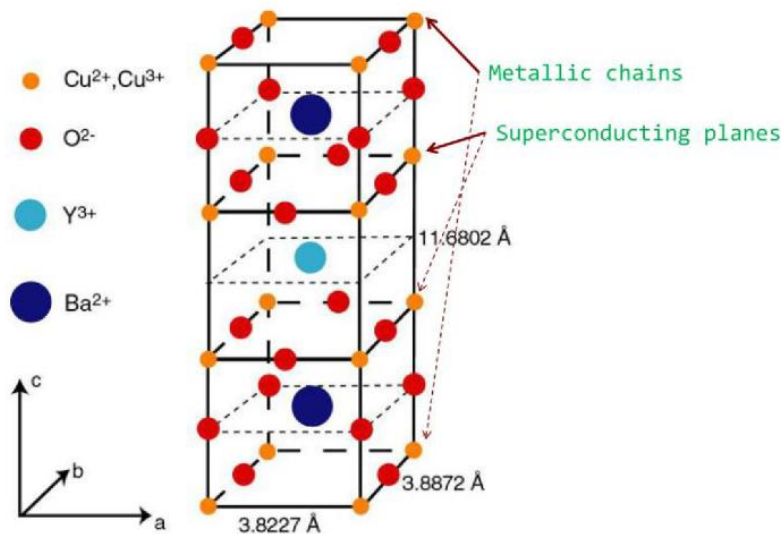


Figura 1.11: Estructura cristalina del YBCO [64].

El $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (*YBCO*) es uno de los superconductores con más relevancia desde el punto de vista tecnológico ya que su temperatura crítica es de 90 K. Esta temperatura es suficientemente alta para utilizar nitrógeno líquido como refrigerante lo que facilita sus aplicaciones tecnológicas.

La estructura cristalina del *YBCO* en fase superconductora es una tripe perovskita, en el eje c aproximadamente tres veces el eje a y b y con simetría ortorrómbica. Se constituye por una sucesión de planos superconductores de CuO_2 que se disponen perpendiculares al eje c . Estos planos contienen portadores de carga libres y es donde fluyen las supercorrientes (Fig. 1.11). La densidad de corriente máxima que puede fluir en el superconductor sin disipación se conoce como densidad de corriente crítica J_c .

Aunque cada plano CuO_2 tiene un electrón de conducción por cada Cu, aparece un comportamiento aislante que se debe a la correlación entre electrones. Este comportamiento se conoce como aislante de Mott en el cual, todos los electrones de conducción están fuertemente ligados a los sitios atómicos. El estado superconductor aparece cuando los huecos de las capas iónicas, en concreto las cadenas de CuO, dopan los planos de CuO_2 , de manera que alteran el número de electrones de conducción desencadenando la transición de Mott. Por tanto, las cadenas de CuO son las responsables de que en los planos CuO_2 de haya una densidad de carga apropiada.

En el *YBCO* la superconductividad se controla por el contenido de oxígeno, el cual determina la densidad de portadores en los planos de CuO_2 y por tanto, controla también la temperatura crítica del material. Es por esto que el dopado óptimo no se consigue para una oxigenación completa del $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, sino para una concentración de oxígeno en torno a $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ (Fig. 1.12).

Como consecuencia de su estructura planar, el *YBCO* presenta propiedades de anisotropía. La densidad de corriente crítica paralela a los planos de CuO_2 (planos ab), J_c^{ab} , es mucho más alta que la densidad de corriente en el eje c , J_c^c , razón por la cual la corriente se aplica paralela a los planos ab en la mayoría de las aplicaciones tecnológicas.

De su estructura laminar, deriva una anisotropía en la superconductividad del *YBCO*. Esta anisotropía se refleja en una dependencia en las direcciones de los parámetros ξ y λ . Esto significa que la estructura de vórtices depende de la orientación magnética relativa a los ejes cristalográficos del material. En consecuencia, se deben definir nuevos parámetros característicos ξ y λ para el vórtice dependiendo de la posición del núcleo y de las supercorrientes con respecto a los planos ab y al eje c . En el caso de la longitud de coherencia, el radio del núcleo del vórtice se define por los parámetros ξ_{ab} y ξ_c cuando el núcleo es paralelo a los planos de CuO_2 o paralelo al eje c respectivamente. Por otra parte, λ_{ab} y λ_c son las longitudes de penetración para supercorrientes que fluyen paralelas a los planos ab y paralelas al eje c respectivamente. Estos

YBCO (T=0K)	c	ab
λ (nm)	890	135
ξ (nm)	0.24	1.6

Tabla 1.1: Resumen de las longitudes de coherencia y longitud de penetración a lo largo de los diferentes ejes cristalográficos del YBCO.

parámetros se indican en la Fig. 1.13 y en la Tab. 1.1.

1.3.3. Materia de vórtices en superconductores de alta temperatura

En el estado mixto de los *HTS* se pueden observar varias fases las cuales son producto de las interacciones vórtice-vórtice de los interplanos, de las fluctuaciones térmicas, de cierto tipo de desorden y del comportamiento anisótropo [66]. Sin embargo, la característica principal de los superconductores de tipo II y en especial de los de alta temperatura, es la existencia de dos estados diferentes: un estado de resistencia cero, magnéticamente irreversible que se conoce como vidrio de vórtices y un estado reversible con propiedades de transporte disipativas llamado líquido de vórtices [67]. En ausencia de desorden, como en sistemas libres de defectos, el vidrio de vórtices presenta orden topológico (red de Abrikosov) y se separa del líquido de vórtices por una tran-

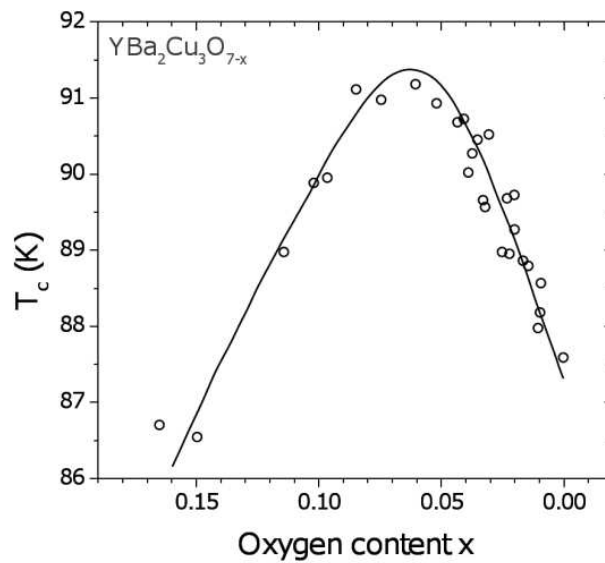


Figura 1.12: Temperatura crítica del YBCO en función de la concentración de oxígeno, x [65].

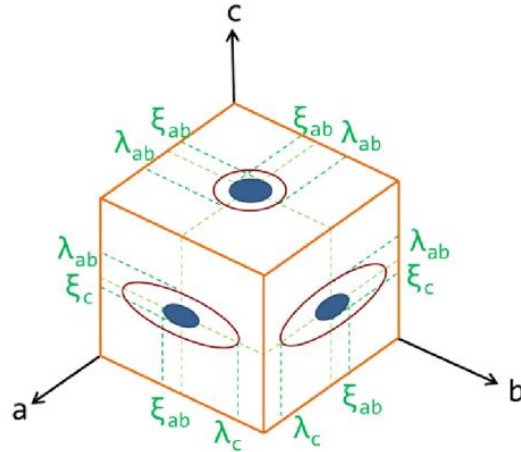


Figura 1.13: Representación esquemática de las longitudes de coherencia y longitud de penetración a lo largo de los diferentes ejes cristalográficos en un superconductor anisótropo donde $a \approx b$ [64].

sición de primer orden. Esta separación se representa en el diagrama de fases por la llamada línea de *melting* [66]. En el caso de que el material presente defectos (desorden), la separación entre el vidrio y el líquido de vórtices se da a través de una transición de segundo orden y se representa por la línea de irreversibilidad [68,69]. La Fig. 1.14 muestra un esquema del diagrama de fases magnético típico del YBCO.

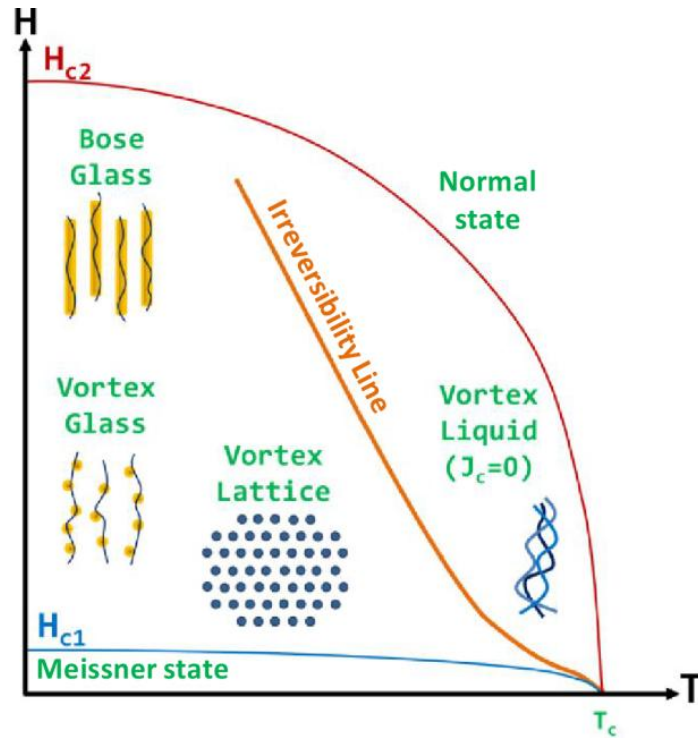


Figura 1.14: Esquema del diagrama de fases magnético del YBCO [64].

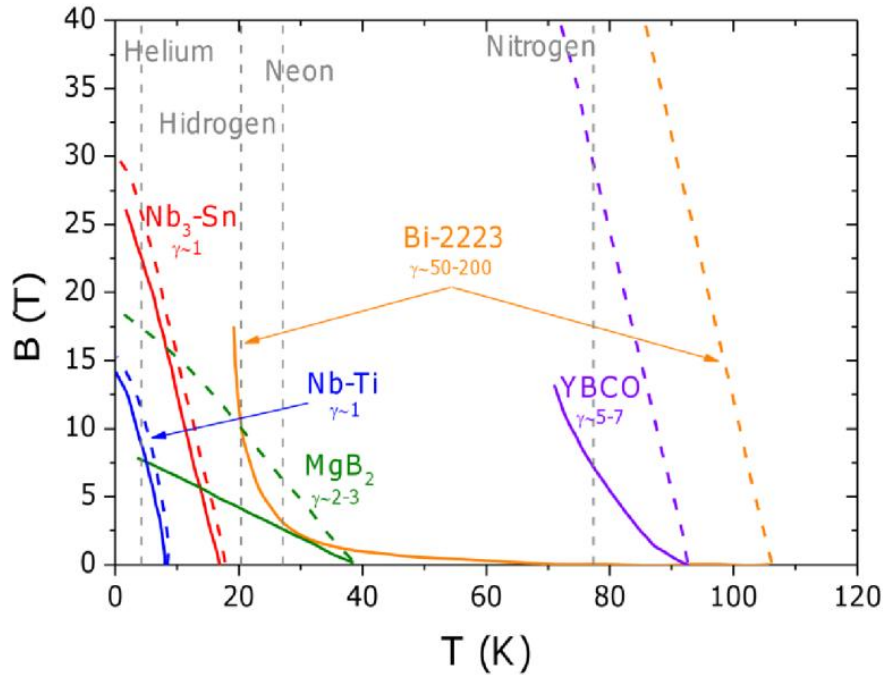


Figura 1.15: Representación del campo de irreversibilidad (línea sólida) y H_{c2} (línea discontinua) en función de la temperatura para materiales con distinta anisotropía. Las líneas discontinuas verticales (gris) muestran la temperatura de los gases más comunes que se utilizan en criogenia [64].

Como se observa en la Fig. 1.14, en el caso del $YBCO$, la región donde se observa resistencia eléctrica cero se delimita por la línea de irreversibilidad (LI). Por encima de LI , el material está en estado superconductor ya que tiene un parámetro de orden finito, sin embargo, presenta una resistencia eléctrica finita debido al movimiento espontáneo de los vórtices, aun en ausencia de corriente eléctrica aplicada. En este régimen, los vórtices se mueven ya que la energía térmica es mayor que la energía capaz de anclar los vórtices al material (energía de anclaje), por lo tanto hay una resistencia eléctrica asociada al movimiento de los electrones normales presentes en el núcleo del vórtice. Por debajo de LI , el material presenta resistencia eléctrica cero, ya que la energía de anclaje es suficiente para anclar los vórtices. Esta región de no disipación es interesante para aplicaciones tecnológicas, además cabe destacar que el $YBCO$ posee la línea de irreversibilidad más alta de todos los superconductores de tipo II (Fig. 1.15).

1.3.4. Dinámica de vórtices

En presencia de una corriente crítica aplicada los vórtices sienten una fuerza de Lorentz por vórtice $\vec{F}_L = \vec{J} \times \vec{\Phi}_0$. Sobre el desplazamiento del vórtice con velocidad \vec{v} se genera un campo eléctrico perpendicular de acuerdo con la ley de Lenz: $\vec{E} = \vec{B} \times \vec{v}$, lo cual significa que por la ley de Ohm $\vec{E} = \rho \vec{J}$,

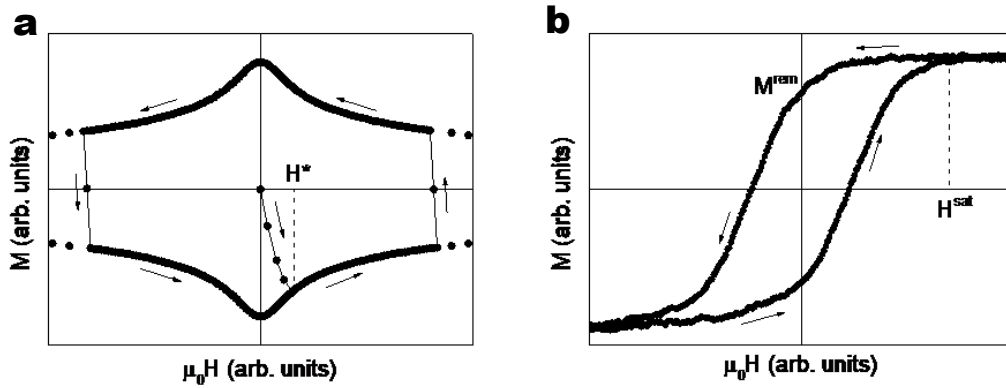


Figura 1.16: Representación esquemática de los ciclos magnéticos en materiales *SC* (a) y *FM* (b) reales [64].

aparece una resistividad en el sistema. Por tanto, el movimiento de vórtices genera disipación de energía y el estado de resistencia cero se pierde incluso aunque muchas partes del material continúen en estado superconductor.

Como se explica anteriormente en este capítulo, el núcleo del vórtice está en estado normal, lo que significa que al formarse un vórtice la superconductividad se destruye en el núcleo implicando un coste energético. Sin embargo, si el material presenta un defecto en el cual la superconductividad esté deprimida, el vórtice se va a anclar en él para reducir la energía del sistema. Esto ejerce una fuerza de anclaje en los vórtices \vec{F}_p que los mantiene anclados a menos que se desanclen por medio de una fuerza de Lorentz mayor. La densidad de corriente mínima necesaria para desanclar los vórtices es J_c . Cabe mencionar que la energía térmica del sistema puede favorecer el desanclaje de los vórtices a través de fluctuaciones térmicas del condensado superconductor o de vibraciones térmicas de los vórtices.

1.3.5. Modelo de estado crítico de Bean

Con la finalidad de describir el comportamiento magnético macroscópico de un superconductor tipo II es muy útil el uso del modelo de estado crítico o modelo de Bean. Este modelo asume que el valor de $H_{c1} = 0$, es decir, los vórtices superconductores penetran dentro del superconductor siempre que el campo aplicado es diferente de cero. Por otro lado, el modelo también asume que la densidad de corriente crítica del superconductor es independiente del campo magnético aplicado. La versión más simplificada de este modelo es asumiendo un cilindro infinito superconductor donde los efectos demagnetizantes o efectos de borde [70, 71] son menospreciables. En este caso el ciclo $M(H)$ resultante tiene una forma cuadrada, a diferencia del ciclo real de la Fig. 1.16-a.

Para describir la penetración y dinámica del campo magnético dentro de un material *SC* es útil empezar por un proceso *ZFC* y un posterior aumento

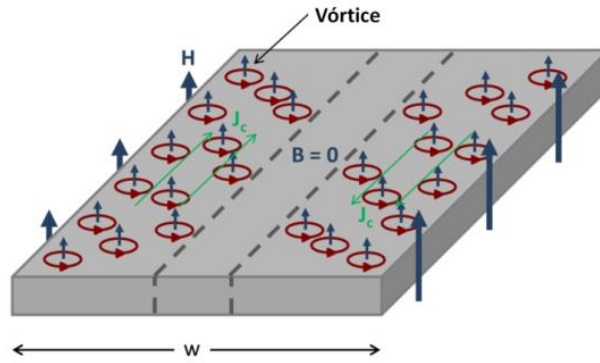


Figura 1.17: Representación esquemática de la penetración de los vórtices en una cinta superconductora de anchura w después de un proceso de ZFC [64].

del campo magnético aplicado H_a perpendicular a la superficie del material. En esta situación los vórtices empiezan a penetrar por los bordes del superconductor y se desplazan hacia el centro del material a medida que el campo magnético externo se incrementa. Las fuerzas de anclaje que se originan en los diferentes defectos presentes en el material se oponen a este desplazamiento de los vórtices y, como consecuencia, se establece una distribución no-homogénea de campo magnético dentro del material. El modelo asume que el gradiente de campo (proporcional a la corriente crítica J_c) es constante [72, 73]. La Fig. 1.17 muestra una representación esquemática de la penetración del campo magnético en el interior del superconductor, así como de las supercorrientes (con densidad de corriente igual a la crítica: J_c) después de un proceso de ZFC . Dado que el campo magnético aplicado es inferior a H^* , los vórtices y las supercorrientes no ocupan toda la superficie de la muestra. H^* se define como el campo a partir del cual todo el superconductor está penetrado por vórtices, siendo directamente proporcional a la distancia lateral del superconductor w .

La Fig. 1.19 muestra los ciclos magnéticos así como los perfiles de campo magnético y supercorrientes generadas en un cilindro infinito después de aumentar y disminuir el campo magnético tras un ZFC , alcanzando distintos valores máximos de campo aplicado (H_a). La primera columna muestra las situaciones cuando $H_a < H^*$, la segunda columna para situaciones donde $H_a = H^*$, y la tercera columna para la situación donde $H_a = 2H^*$. Los diferentes perfiles que se muestran corresponden a situaciones donde $M < 0$ (Fig. 1.19-b_i, b_{ii} y b_{iii}), $M \sim 0$ (Fig. 1.19-b_{iv}, b_v y b_{vi}), y $M > 0$ (Fig. 1.19-b_{ii}, b_{iii} y b_{ix}). Como se puede observar, y como ya se ha comentado anteriormente, los vórtices penetran toda la superficie del material cuando el campo magnético aplicado es H^* . Sin embargo, para conseguir una magnetización remanente máxima, es necesario que el campo magnético máximo sea $2H^*$.

El valor de H^* viene determinado por las propiedades intrínsecas del superconductor como son la densidad de corriente crítica con campo aplicado igual

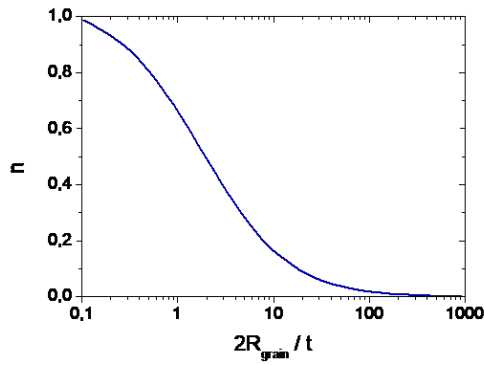


Figura 1.18: Factor numérico adimensional n , en función de $2R_{\text{grain}}/t$ [64].

a cero y la geometría del material [74]. Para un disco superconductor de radio R_{grain} :

$$\mu_0 H^* = J_c(H=0)nR_{\text{grain}} \quad (1.3)$$

donde n es un factor numérico adimensional, Fig. 1.18, que depende de $2R_{\text{grain}}/t$, siendo t el espesor del superconductor. Debido a la geometría de nuestros sistemas $R_{\text{grain}} \gg t$ resultando en valores de $H^* \sim 0$ por lo que incluso los pulso magnéticos más pequeños que apliquemos ($\sim 500\text{Oe}$) supondrán una saturación de nuestros dispositivos desde el punto de vista del superconductor.

En el caso de una muestra real donde las dimensiones son finitas, y en especial en capas finas donde el espesor es mucho menor que cualquier dimensión lateral, los efectos demagnetizantes cobran especial relevancia. En estos casos los perfiles de campo magnético y supercorrientes de la Fig. 1.19 se distorsionan sobretodo en los bordes del material [75], Fig. 1.20.

Para el caso de una muestra superconductora finita con forma de disco o cuadrado el campo que crean las corrientes del superconductor se puede simular numéricamente a partir de la ley de Biot y Savart como hacen Palau et al. en estructuras similares a las de este trabajo de tesis [11]. Para este cálculo es necesario conocer el valor de densidad de corriente crítica del *YBCO*, el cual a 50 K (temperatura a la cual se realizan la mayoría de las medidas del capítulo 4) y en ausencia de campo magnético aplicado es $J_c \approx 10^{11} \text{ A/m}^2$.

Debido a las diferentes dependencias magnéticas de los materiales ferromagnéticos y superconductores, se espera que su acoplamiento en estructuras híbridas produzca estados magnéticos emergentes no triviales. Los campos magnéticos generados por cada uno de los materiales por separado (*stray fields*) se suman al campo magnético aplicado modificando el campo magnético local en las diferentes partes de los diferentes materiales. Mediante el uso de materiales

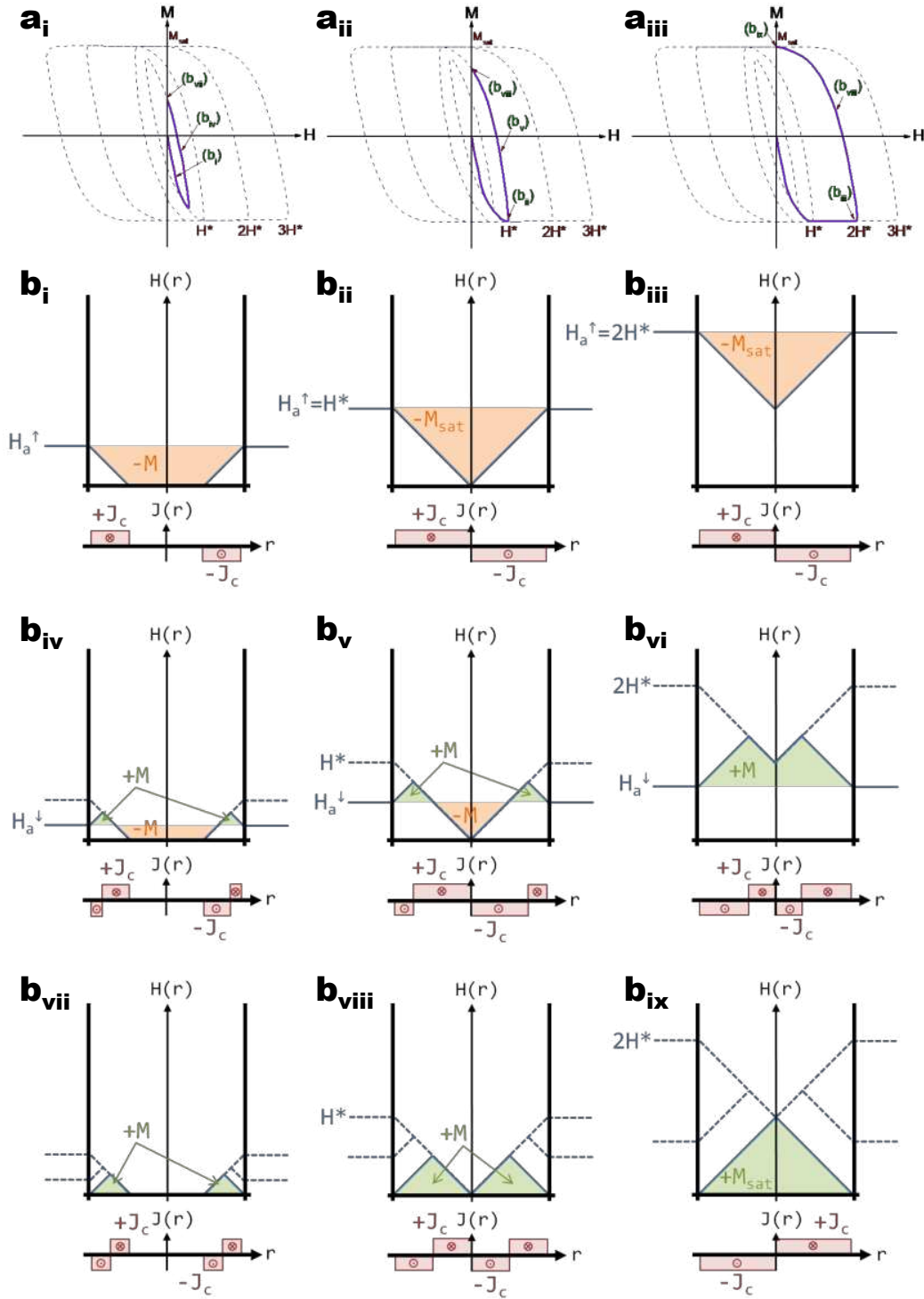


Figura 1.19: Representación esquemática de los ciclos magnéticos de un cilindro infinito superconductor. En línea continua se marca la magnetización después de alcanzar valores máximos de campo magnético de $H_a < H^*$, $H_a = H^*$ y $H_a > H^*$. Los diferentes perfiles de campo magnético y densidad de corriente crítica de cada columna corresponden a los distintos puntos indicados en los distintos ciclos. En línea discontinua se muestran los estados anteriores [64].

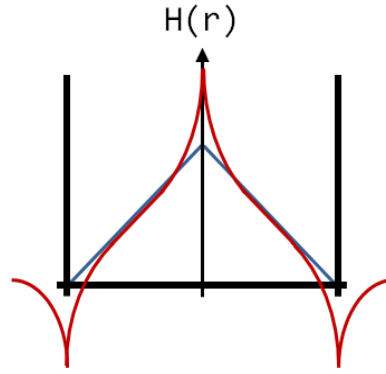


Figura 1.20: Representación esquemática del perfil de campo magnético atrapado tras saturación en un cilindro infinito (azul; equivalente a Fig. 1.19-b_{ix}), y en una muestra real de dimensiones finitas (rojo) [64].

superconductores y teniendo en cuenta los complejos estados remanentes de éstos (Fig. 1.19-b_{vii}, b_{viii} y b_{ix}), se pueden imprimir estados magnéticos únicos en los materiales ferromagnéticos nanoestructurados. Por otro lado, para el caso de materiales superconductores, la reducción del tamaño permitirá la saturación del material a campos menores (valores de H^* menores) y por tanto una mayor eficiencia.

Estas complejas estructuras magnéticas vienen originadas como ya se ha comentado por las distribuciones no homogéneas de supercorrientes en el superconductor. Las corrientes se originan dentro del superconductor con la finalidad de apantallar cualquier perturbación de campo magnético externo, generando una magnetización en el interior de éste. En la Fig. 1.21 se representa la región del superconductor donde aparecen las supercorrientes (paneles superiores) para diferentes perfiles de campo magnético (paneles inferiores). Partiendo de una situación de *Zero Field Cool*, al aplicar un campo magnético como se indica en la Fig. 1.21 se originan unas supercorrientes en el superconductor tales que generan una magnetización en sentido contrario. Tal y como se observa en la Fig. 1.19, las supercorrientes están en la periferia del superconductor y van penetrando hacia el interior a medida que el campo magnético aumenta, aumentando así la magnetización resultante. Cuando el campo magnético es igual a H^* , las supercorrientes ocupan toda la muestra y la magnetización se satura, según el modelo de estado crítico de Bean.

Al disminuir el campo magnético (Fig. 1.21-f-i), el superconductor apantalla esta variación de campo magnético mediante la formación de supercorrientes en sentido contrario. Estas supercorrientes ‘opuestas’ se originaran de nuevo en la periferia y van penetrando hacia el interior del superconductor a medida que el campo magnético disminuye.

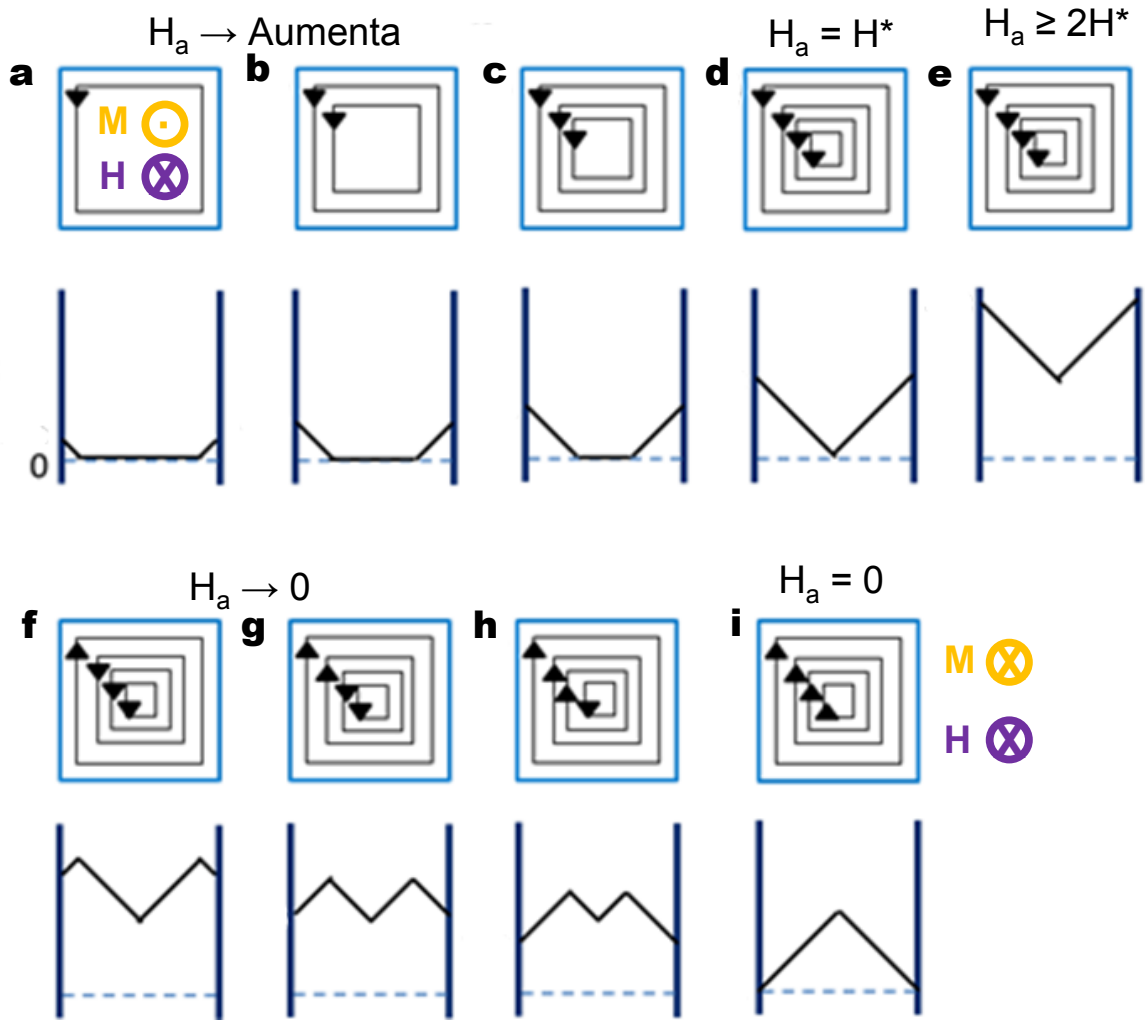


Figura 1.21: Representación esquemática de la región del superconductor donde aparecen las supercorrientes (paneles superiores) para diferentes perfiles de campo magnético (paneles inferiores).

En los últimos años, y debido al interés en controlar y manipular nuevos estados magnéticos y electrónicos, se está investigando activamente en la creación de nuevos estados magnéticos no triviales, como vórtices, esquirmiones y monopolos. Los defectos monopolares artificiales son especialmente atractivos debido a su similitud con las cargas magnéticas. Autores han conseguido generar defectos en materiales tipo hielo de espín o en forma de paredes de dominio de tipo *head to head* en nanohilos magnéticos [76–83], pero aún se necesitan mecanismos para imprimir y manipular controladamente estas estructuras de espín. Una de las estrategias más novedosas para la codificación de estados magnéticos no triviales y robustos consiste en fabricar dispositivos híbridos, formados por estructuras micrométricas de un material superconductor que interactúa con una película delgada ferromagnética (*FM*) depositada encima. De esta manera se observa que se pueden utilizar los campos magnéticos o *stray fields* creados por las supercorrientes de las estructuras superconducto-

ras para imprimir, estabilizar, modificar y aniquilar patrones magnéticos en la capa ferromagnética.

2 Técnicas experimentales

En este capítulo se describen las técnicas que se utilizan para elaborar las muestras de esta tesis doctoral, así como los equipos necesarios para caracterizarlas y obtener las medidas de los resultados.

2.1. Pulverización catódica

Para crecer las películas delgadas de óxidos complejos se emplea un sistema de pulverización catódica (o *sputtering*) de alta presión de oxígeno. Este mecanismo consiste en una cámara a la que se le hace un vacío de $\sim 10^{-5} \text{ mbar}$ para eliminar las impurezas que haya debidas a la apertura de la cámara para la colocación de los sustratos. Para ello se conecta a la cámara un sistema de dos bombas de vacío, una bomba de membrana que proporciona un vacío de $\sim 10^{-1} \text{ mbar}$ y seguidamente una bomba turbomolecular que empieza a funcionar a partir de la presión anterior. La bomba turbomolecular opera en dos modos, uno a 75 krpm que permite alcanzar un vacío de $\sim 10^{-6} \text{ mbar}$ y otro *low speed* a 45 krpm con el que se permite la circulación de oxígeno en el sistema. Ambos modos de trabajo se seleccionan en un panel de control. Seguidamente se introduce un gas de oxígeno de alta pureza (99,999 %) a una presión que depende del material que se vaya a crecer. En este caso la presión que se emplea es $3,4 \text{ mbar}$.

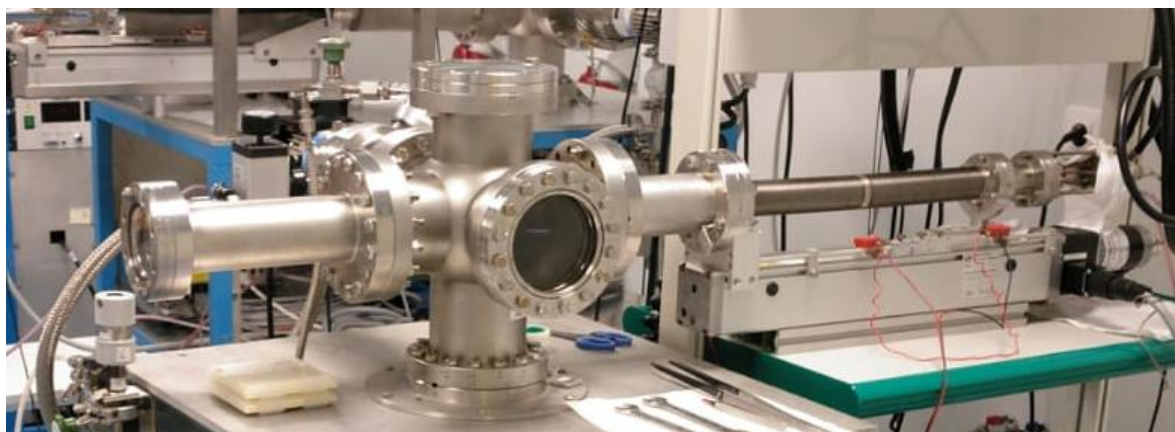


Figura 2.1: Vista del sistema de crecimiento constituido por una cámara de vacío con un brazo mecánico automatizado que contiene los diferentes blancos de óxidos complejos.

Para el crecimiento de las películas delgadas, se colocan dentro de la cámara los blancos o *targets* de los materiales necesarios y encima de un sistema de calentamiento controlado se colocan los sustratos sobre los que se va a depositar el material. Aplicando una tensión de polarización al blanco se ioniza el oxígeno y se forma un plasma localizado alrededor de la superficie del *target*. Dependiendo del tipo de material se emplean distintos tipos de tensión, para el *YBCO*, al ser conductor, se tiene que aplicar una tensión *DC*, que es proporcionada por una fuente de tensión *DC*. Para materiales aislantes o de baja conductividad se emplean fuentes de radiofrecuencias (*RF*) como es el caso de las manganitas *LCMO* y *LSMO*, para evitar acumulación de carga en la superficie del blanco. Los iones de oxígeno son atraídos por el blanco lo que provoca un bombardeo que disgrega su superficie en forma de átomos que se depositan sobre la superficie del sustrato caliente dando lugar a una lámina delgada epitaxial con una estequiometría igual a la del blanco. Gracias a la alta presión de oxígeno del interior de la cámara se evitan efectos de *re-sputtering* y se favorece la completa termalización a través del *scattering* múltiple de iones con la atmósfera. Por todo esto, el proceso de crecimiento es muy controlable llegando a obtener un ritmo de crecimiento bajo de $\sim 1\text{nm}/\text{min}$. Para que la difusión de los iones en la superficie de la película delgada tenga lugar y así conseguir un crecimiento epitaxial y una alta calidad estructural, es necesario que el crecimiento sea a alta temperatura (900 C), para lo que se usa un horno diseñado específicamente. Para conseguir un contenido de oxígeno óptimo es necesario seguir unos pasos de temperatura-presión para el crecimiento que se representan en la Fig. 2.2.

En la Tab. 2.1 se hace un resumen de los parámetros óptimos para el creci-

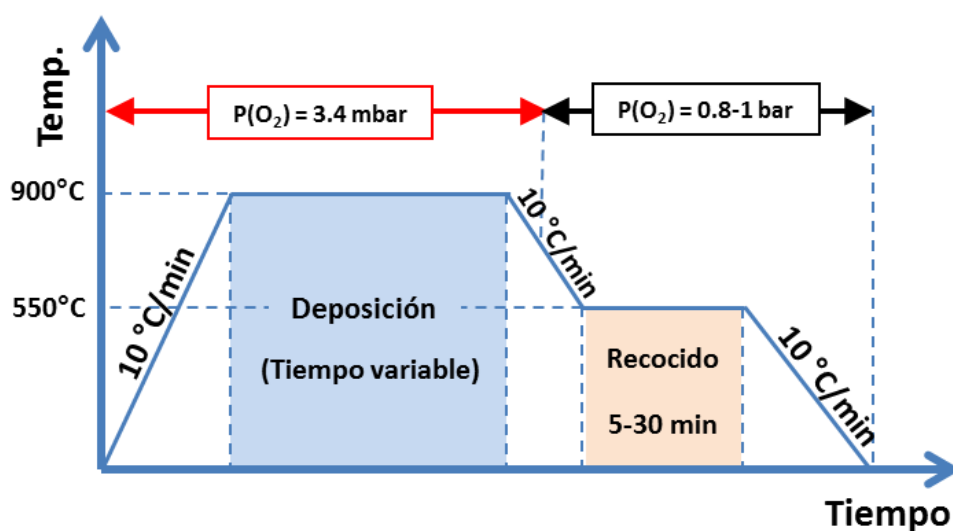


Figura 2.2: Deposición de óxidos complejos mediante *sputtering* de alta presión de oxígeno. Ciclo en función de temperatura y presión.

Tipo de Óxido	YBa ₂ Cu ₃ O ₇	La _{0.7} Sr _{0.3} MnO ₃
Familia	Cupratos	Manganitas
Diámetro del blanco	30 - 50 mm	
Fuente de tensión	DC	RF
Temp. crecimiento	900 C	900 C
Presión de O ₂	3.4 mbar	3.2 mbar
Ritmo crecimiento	~ 0.7 - 1.1 nm/min.	
Temp. oxigenación	600 C	800 C
Temp. recocido	550 C	
Tiempo recocido	30 min.	

Tabla 2.1: Resumen de los parámetros de crecimiento para *YBCO* y *LSMO*.

miento de películas delgadas de óxidos complejos.

2.2. Caracterización estructural y morfológica

En el siguiente apartado se incluyen los detalles de las técnicas necesarias para la caracterización morfológica y estructural de las películas delgadas de óxidos complejos.

2.2.1. Difracción de rayos X (XRD)

La técnica que se usa para la caracterización estructural de todas las muestras de este trabajo es la difracción de rayos X, que tiene un carácter no invasivo y por tanto no destructivo. El análisis de los patrones de *XRD* permite obtener información sobre la composición, el grado de perfección estructural o epitaxia, los defectos, la orientación del crecimiento o el espesor de la película delgada crecida encima del sustrato.

Los patrones de difracción se miden en un difractómetro *PhilipsX'pert MRD*, que utiliza como fuente de radiación un tubo de rayos X con cátodo de cobre que trabaja a 45KV y 40mA. La radiación que se utiliza es $\lambda_x = 0,15418nm$ (Fig. 2.3). Este difractómetro es un dispositivo de alta resolución, que consta de un goniómetro de cuatro círculos con geometría Euleriana. La configuración de medida que se utiliza es la geometría Bragg-Brentano,

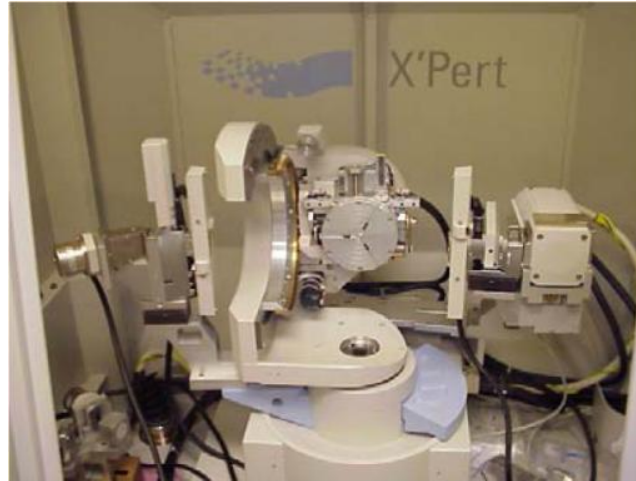


Figura 2.3: Difractómetro *PhilipsX'pert* del Centro de Apoyo a la Investigación (CAI) de Difracción de rayos X de la Universidad Complutense de Madrid.

también llamada $\theta - 2\theta$. En esta geometría, el ángulo de incidencia del haz de rayos X en la muestra (θ) se cambia y en un movimiento sincronizado, el ángulo del detector se cambia en la cantidad doble (2θ). De esta forma la radiación que se detecta corresponde siempre a la dirección de reflexión, geometría especular. La alineación se realiza de modo que el vector de dispersión de rayos X sea siempre perpendicular al sustrato, observando, por tanto, los picos de difracción relacionados con las distancias en la dirección de fuera del plano $00L$ (Fig. 2.4).

La celda unidad de un sólido está formada por planos paralelos separados por una distancia d y estos planos reflejan las ondas de rayos X incidentes, cada plano refleja una pequeña fracción de radiación. La diferencia de trayectoria entre dos planos adyacentes es $2d\sin(\theta)$, donde θ se mide desde el plano de la

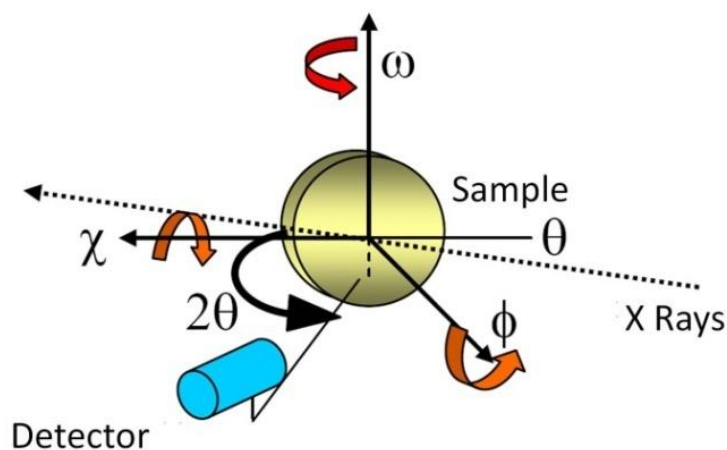


Figura 2.4: Ángulos asociados al movimiento del difractómetro [84].

muestra. La interferencia es constructiva cuando la diferencia de trayectoria de los planos sucesivos de radiación reflejada es un número entero de longitudes de onda λ . La condición que conduce a la interferencia constructiva de la radiación reflejada, conocida como Ley Bragg, establece:

$$2d_{hkl}\sin(\theta) = n\lambda \quad (2.1)$$

donde d_{hkl} es la distancia interplanar de la familia, θ es el ángulo de incidencia, λ es la longitud de onda de los rayos X y n es el orden de reflexión. En geometría especular, el espectro de difracción de ángulo alto muestra sólo las familias de planos paralelas a la superficie, obteniendo los picos correspondientes a las reflexiones $00L$ y, por lo tanto, los planos perpendiculares al eje c . La longitud de coherencia estructural se obtiene a partir del ancho del pico en las fórmulas de Scherrer [85]:

$$\xi = \frac{0,9\lambda}{b\cos(\theta)} \quad (2.2)$$

donde b es la anchura a media altura de la intensidad máxima y θ el ángulo de Bragg.

Reflectividad de Rayos X (XRR)

La reflectividad XRR es una medida de XRD pero con valores pequeños del ángulo de incidencia, incidencia rasante, $2\theta \leq 10^\circ$.

$$q = \frac{2\sin(\theta)}{\lambda} \quad (2.3)$$

donde $\lambda = 1,54\text{\AA}$, por lo tanto, el vector de onda incidente es $4,07\text{\AA}^{-1}$, por lo tanto, el vector de dispersión es más corto que $0,71\text{\AA}^{-1}$ (porque $2\theta < 10$ en XRR), y las distancias d que dan origen a los fenómenos de difracción son:

$$d = \left(\frac{1}{q}\right) > 8,83\text{\AA} \quad (2.4)$$

más largas que la mayoría de distancias interplanares. Pero los rayos X son sensibles a la composición química del material a través del índice de refracción, que es proporcional a la densidad electrónica promedio [86].

$$n = 1 - \frac{\rho_N r_e \lambda_x^2}{2\pi} (f_0 + \Delta f' - i\Delta f'') \quad (2.5)$$

dónde ρ_N es la densidad electrónica, r_e es el radio electrónico, λ_x la longitud de onda de los rayos X, f_0 el factor de dispersión atómica, $\Delta f'$ y $\Delta f''$ los factores de corrección de dispersión anómalos. El índice de refracción es el número complejo:

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (2.6)$$

$$\delta = \frac{\rho_N r_e \lambda_x^2}{2\pi} (f_0 + \Delta f') \quad (2.7)$$

$$\beta = \frac{\rho_N r_e \lambda_x^2}{2\pi} \Delta f'' \quad (2.8)$$

El índice de difracción del componente real es $(1 - \delta)$, donde $\delta = 3 \cdot 10^{-5}$. Parte de la radiación incidente se refleja en la superficie y otra parte penetra en la película, esta última se refleja en la interfaz del sustrato con la película y atraviesa la superficie de la película nuevamente. Cuando ambos haces interfieren, se obtienen patrones de interferencia con máximos y mínimos, estas ondulaciones se denominan "oscilaciones de espesor finito". A partir de estas oscilaciones, se puede medir el espesor de la película, utilizando la Ley de Bragg para las posiciones angulares máxima y mínima:

$$\sin^2(\theta) = \left[\frac{(n + k)\lambda_x}{2d} \right]^2 + 2\delta \quad (2.9)$$

donde d es el espesor de la película, $(1 - \delta)$ es la parte real del índice de refracción (2.6) y $k = 0$ corresponde a una intensidad mínima, mientras que $k = 1/2$ corresponde a un máximo, si el sustrato tiene una densidad electrónica inferior a la de la película [87].

Además, el tamaño del haz es grande debido a la incidencia rasante, y por tanto se promedia en una gran área de la muestra. La aparición en XRR de oscilaciones de espesor finito bien definidas indica una rugosidad de la superficie inferior a una celda unitaria en largas distancias laterales.

2.2.2. Microscopía de fuerza atómica (AFM)

La microscopía de fuerza atómica *AFM* actualmente está muy extendida para caracterizar superficies de muestras (topografía de superficie, fase, resistividad ...). Su resolución en la dirección vertical es del orden de sub nanómetro, mientras que el lateral está limitado por el radio de curvatura de la punta, del orden de unas pocas decenas de nanómetros.

Las imágenes de *AFM* de esta tesis se obtienen con un microscopio *Nanoscope* equipado con punta *TESP – SS* de Silicio dopado con Antimonio en modo dinámico del Centro Nacional de Microscopía Electrónica de la Universidad Complutense.

El *AFM* se basa en una sonda, constituida por una punta afilada al final de una micro palanca, fleje o *cantilever*. La punta tiene la altura del orden de micrómetros y un radio de curvatura generalmente de $10 - 20\text{nm}$. Al acercarse a una superficie, el *cantilever* reacciona a las fuerzas entre la punta y la superficie investigada, desviándose en la primera aproximación de acuerdo con la ley de Hooke. Varias clases de fuerzas atómicas están involucradas en tal interacción, entre las cuales la fuerza de van der Waals es la dominante. Al escanear la punta sobre la superficie bajo investigación, el *cantilever* reacciona a la topografía de la muestra. Un circuito de retroalimentación que controla la desviación del *cantilever* mantiene la punta a una distancia constante de la superficie o la fuerza de contacto constante (dependiendo del modo de exploración que se emplee) al mover la sonda hacia abajo o hacia arriba. Tal movimiento da la topografía de la superficie escaneada. La desviación del *cantilever* se mide ópticamente. Una luz láser de un diodo de estado sólido se refleja desde la parte posterior del voladizo y se recoge mediante un fotodetector que consiste en varios pequeños fotodiodos distribuidos en el plano, cuya señal de salida es recogida por un amplificador diferencial. El desplazamiento angular del *cantilever* da lugar a que un fotodiodo recoja más luz que el otro fotodiodo, produciendo una señal de salida. Por lo tanto, el detector realiza un seguimiento de la desviación del *cantilever*. En la Fig. 2.5 se muestra un esquema del sistema *AFM* y su funcionamiento.

La dependencia con la distancia de las fuerzas entre la punta y la muestra puede ser aproximada por un potencial de Lennard-Jones. A distancias cortas ($< 10\text{\AA}$), la fuerza es repulsiva, debido a las cargas iónicas en ambos materiales. Para distancias más grandes (de 10\AA a 200\AA), la fuerza cambia de dirección debido al predominio de las fuerzas atractivas de van der Waals que se originan por la polarización de las nubes de electrónicas alrededor del núcleo. Basándose en las fuerzas que actúan y en la distancia entre la punta y la superficie, se pueden definir los modos típicos de trabajo de *AFM*:

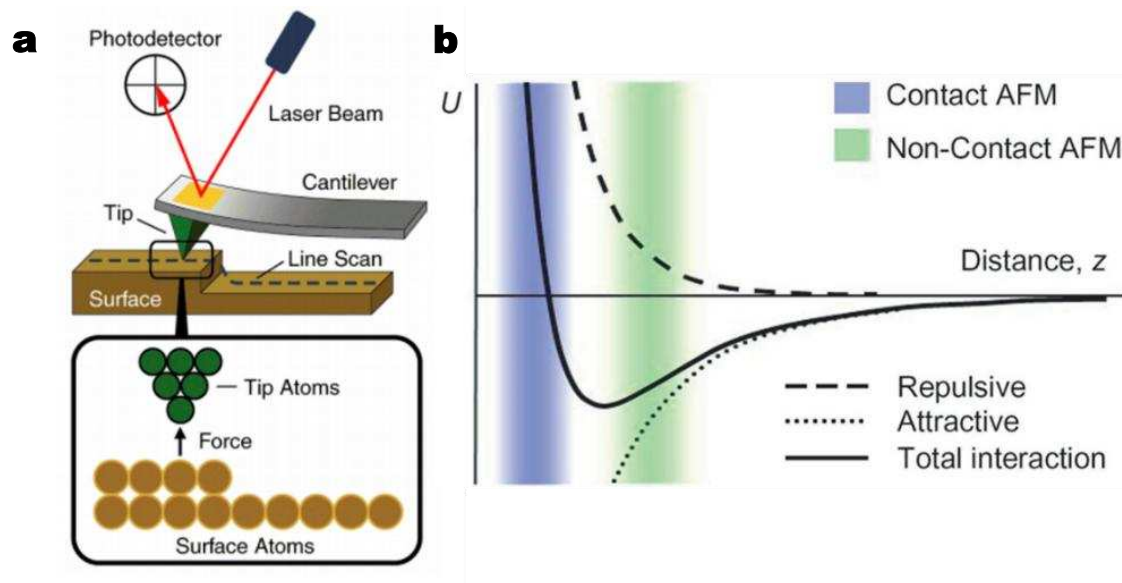


Figura 2.5: Esquema del principio de operación del *AFM* y del potencial de van der Waals en función de la separación punta muestra, tomado de [88].

Modo de Contacto

En el modo de contacto (también llamado modo estático), la punta se "arrastra" a través de la superficie de la muestra y la topografía de la superficie se mide utilizando la desviación del *cantilever* directamente o, más comúnmente, utilizando la señal de retroalimentación requerida para mantener el *cantilever* en una posición constante. Cerca de la superficie de la muestra, las fuerzas atractivas pueden ser bastante fuertes, lo que hace que la punta se pegue a la superficie. Por lo tanto, el *AFM* en modo de contacto casi siempre se realiza a una altura donde la fuerza general es repulsiva.

Modo de *Tapping* o contacto dinámico

También llamado contacto intermitente es el modo *AFM* más empleado para la obtención de imágenes de topografía porque evita el problema del modo contacto de acercar la punta a pequeñas distancias de la muestra y evitar que se pegue a la superficie. En este método de *tapping* en cambio, la punta oscila a una frecuencia cercana a la frecuencia de resonancia del *cantilever* con una amplitud que varía típicamente de 10nm a 100nm . Las variaciones en la distancia promedio de la punta de la superficie hacen que la amplitud de la oscilación cambie. Esta amplitud de vibración se reduce cuando la punta se aproxima a la superficie de la muestra debido a fuerzas repulsivas. El circuito de retroalimentación controla el valor cuadrático medio (*RMS*) de la oscilación adquirido por el fotodetector y lo mantiene constante en un valor determinado mediante movimientos verticales de todo el sistema.

Las imágenes de *AFM* de esta tesis se obtienen con un microscopio *Nanoscope* equipado con punta TESP-SS de Silicio dopado con Antimonio en modo dinámico del Centro Nacional de Microscopía Electrónica de la Universidad Complutense.

2.2.3. Microscopía electrónica de barrido (SEM)

De la necesidad de una técnica de caracterización a escala nanométrica nace en 1937 el microscopio electrónico de barrido (*SEM*) de la mano de Manfred von Ardenne. Esta tecnología da lugar a un poder de resolución inferior al nanómetro lo que permite resolver características morfológicas no observables mediante microscopía óptica. Fundamentalmente un *SEM* proporciona una imagen de topografía gracias a la incidencia de un haz de electrones (electrones primarios) sobre la superficie de la muestra. Los electrones son acelerados y como consecuencia de su impacto sobre la muestra se producen efectos de absorción y reflexión de electrones que se recogen por un detector. Además se emite radiación electromagnética (rayos-X, luz visible) y electrones secundarios retrodifusos o electrones Auger. Los electrones reflejados son lo que se utilizan para la microscopía electrónica de barrido (Fig. 2.6). Estos electrones

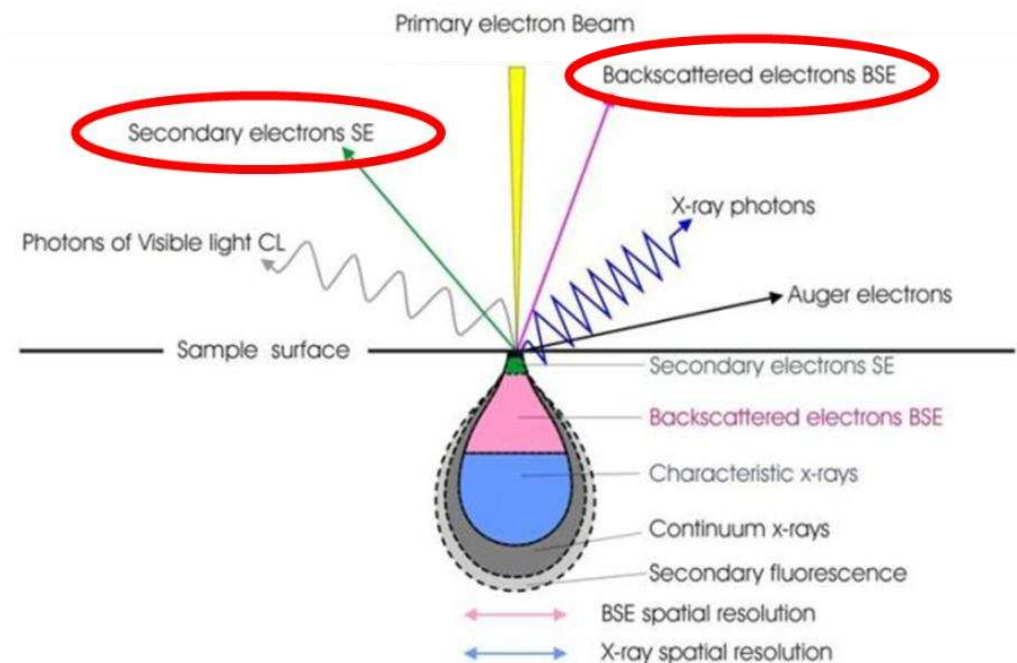


Figura 2.6: Representación esquemática de los productos de la interacción de los electrones primarios (haz) con la muestra. Se observa la emisión de radiación electromagnética (rayos-X, luz visible) y electrones (secundarios, retrodifusos, Auger). En el interior de la muestra se representan los volúmenes de interacción de cada proceso. Los electrones secundarios y retrodifusos (ambos marcados en rojo) son los que se utilizan para la microscopía electrónica de barrido [22].

se originan a partir de dos fenómenos:

Difusión Inelástica

Se produce en la superficie de la muestra y penetra unas pocas decenas de nm, con energía inferior a 50eV . Genera electrones secundarios o *secondary electrons* (*SE*).

Difusión Múltiple

Se produce a profundidades que pueden llegar a unos pocos μm , con energía superior a 50eV . Genera electrones retrodispersados *back scattered electrons* (*BSE*). A medida que aumenta el número atómico Z , mayor es la producción de este tipo de electrones, por lo que de ellos se extrae información de la topografía y de la composición de la muestra.

En el caso del *SEM* que se utiliza en este trabajo la fuente generadora de electrones es un filamento (*SEM* termoiónico) cuya composición suele ser tungsteno (W) o hexaboruro de lantano (LaB_6). Al filamento se le aplica una corriente alta lo que hace que se emitan electrones por efecto termoiónico siguiendo la ley de Richardson que relaciona la densidad de corriente J_c de electrones emitidos por un material en función de la temperatura en el vacío:

$$J_c = AT^2 e^{-\frac{\phi}{KT}} \quad (2.10)$$

Donde ϕ es la función de trabajo del metal, K y A son la constante de *Boltzmann* y *Richardson* respectivamente y T la temperatura absoluta. La densidad de corriente de un filamento de LaB_6 es un orden de magnitud mayor que la del de W a una temperatura de aproximadamente 1000 K menor.

Para producir un haz electrónico adecuado no es suficiente con la emisión termoiónica del filamento por lo que es necesario recurrir a una estructura compuesta por una cañón electrónico y una columna electro-óptica. De esta forma se puede controlar tanto la geometría del haz como la corriente del mismo. El Fig. 2.7 se describe la geometría del cañón de electrones.

2.2.3.1. Microscopio Electrónico de Barrido

Un *SEM* está compuesto, fundamentalmente, de una columna electro-óptica, una cámara de trabajo, un sistema de detección de electrones y un sistema informático. Los electrones generados por el cañón atraviesan la columna, la cual,

a través de un sistema de aperturas y lentes magnéticas ajusta el diámetro, la distancia focal, el astigmatismo y la densidad de corriente, para optimizar el

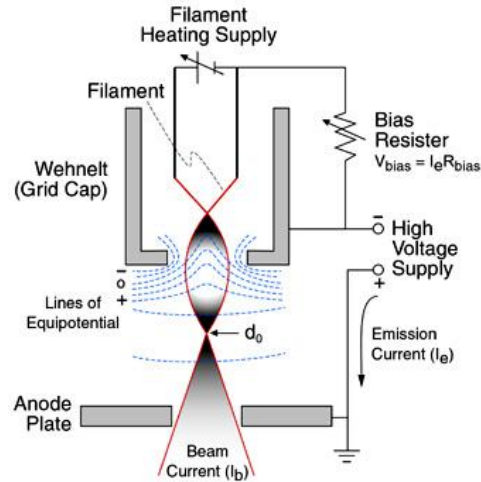


Figura 2.7: Representación esquemática de un cañón termoiónico [89].

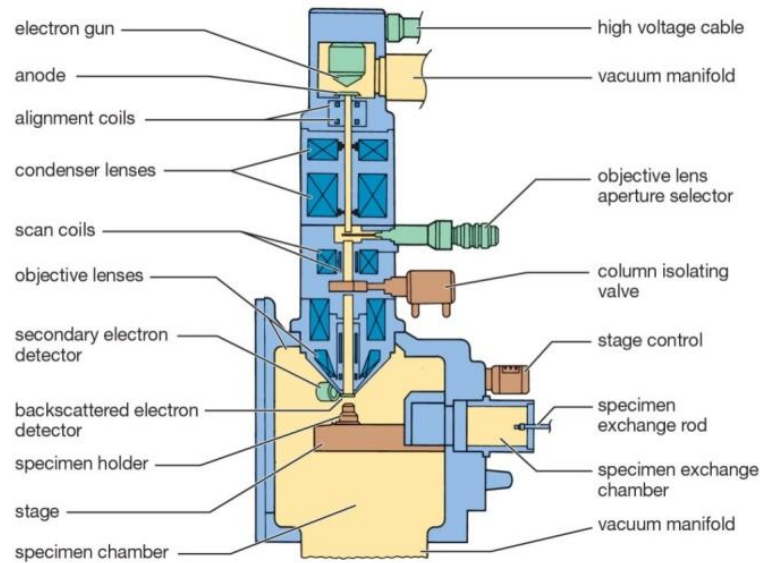


Figura 2.8: Arquitectura de un microscopio electrónico de barrido convencional [90].

haz (Fig. 2.8). El sistema de detección recoge la señal producida por la interacción haz-muestra y a través de un software se reconstruye la imagen de la superficie de la muestra. Los problemas más habituales que presentan los microscopios electrónicos son pequeños defectos de fabricación en alguno de sus componentes y contaminaciones de la cámara. Esto induce asimetrías en los campos magnéticos de las lentes que se traduce en fenómenos de astigmatismo por lo que es necesario un sistema adicional de bobinas de compensación para minimizar este tipo de aberraciones.

En la parte baja de la columna se encuentra la cámara de trabajo en cuyo

interior se encuentra una plataforma móvil monitorizada (*stage*) sobre la que está montado el porta muestras, los detectores de electrones secundarios o retrodispersados y una cámara de infrarrojos que permite observar el interior desde la pantalla del ordenador. El interior de la cámara se mantiene a presiones de $\sim 10^{-6}$ – 10^{-7} mbar (alto vacío). Para este trabajo de tesis se ha utilizado un microscopio electrónico de barrido *Zeiss EVO 50* de emisión termoiónica basado en LaB_6 instalado en el Centro de Apoyo a la Investigación (CAI) de Técnicas Físicas de la Universidad Complutense de Madrid (Fig. 2.9).

2.3. Técnicas de Nanofabricación

2.3.1. Proceso de Nanofabricación

Las propiedades físicas de los materiales pueden verse alteradas al reducir sus dimensiones a la escala micro y nanométrica y para su estudio es necesario emplear complejas técnicas de micro y nanofabricación. La reducción del tamaño de los materiales es interesante desde el punto de vista tecnológico ya que cada vez se incrementa más la complejidad y la densidad de dispositivos por unidad de chip. De esta búsqueda constante surge la necesidad del control sub-nanométrico de las dimensiones de un dispositivo a la hora de su fabricación. La manera de reducir las dimensiones de forma controlada es mediante un proceso de litografía que consiste fundamentalmente en la transferencia de un patrón desde una máscara (física o digital) a un material. Para ello es necesario depositar un material sensible a electrones y/o fotones (resina) en la superficie de la muestra o sustrato. La resolución de este proceso vendrá determinada por la longitud de onda incidente, la cual será de nanómetros para onda electrónica (sec. 2.3.1) y de micras para una onda *UV* (fotones) (sec. 2.3.1.2).



Figura 2.9: *RAITH 50* del CAI de técnicas físicas. Voltaje de operación 10/20 KV.

La resina se suele componer por polímeros que son sensibles a una de las radiaciones anteriormente mencionadas o a ambas (electrones y/o fotones), se adhieren bien al sustrato o muestra, tienen elevada temperatura de transición vítrea (T_g) y son fáciles de retirar al finalizar el proceso. Con estas características se pueden encontrar resinas de litografía electrónica (sensibles a la irradiación por electrones), fotoresinas (sensibles a la irradiación por fotones *UV*) y resinas híbridas (sensibles a ambos tipos de radiación). La porción de resina que se diluye con el revelador, deja a la vista zonas de la muestra que posteriormente se eliminan mediante procesos de comido o *etching* dando lugar al dispositivo que previamente se ha diseñado.

Existen dos tipos de resina: resinas positivas en las que la irradiación rompe las cadenas del polímero en monómeros pasando a ser solubles en el líquido revelador y resinas negativas, las cuales, son solubles en el líquido revelador y al ser irradiadas se generan enlaces extra en el polímero que provoca agregados poliméricos de elevado peso molecular no solubles en el revelador Fig. 2.10.

A la hora de realizar una litografía donde el haz es movable, como es el caso de la litografía electrónica utilizada en este trabajo, es imprescindible utilizar el tipo de resina adecuado con la finalidad de minimizar el tiempo de exposición, y más importante, conseguir una resolución optimizada.

Todos los procesos para fabricar este tipo de muestras requieren de un control exhaustivo de limpieza por lo que es necesario recurrir a hacerlos en el interior de una sala blanca. En este caso concreto, todos los procesos de litografía necesarios para este trabajo de tesis doctoral han sido realizados en el interior de la sala blanca de clase 1000 (y sala de litografía de clase 100) del Centro de Apoyo a la Investigación (*CAI*) de la Facultad de Física de la Universidad Complutense de Madrid.

En este trabajo de tesis se utilizan dos técnicas de litografía dependiendo de la resolución que se pretende alcanzar. La litografía electrónica (resoluciones $\sim 50nm$) se ha empleado para fabricar el dispositivo, mientras que la litografía óptica (resoluciones $\sim 1\mu m$) para elaborar contactos metálicos con los que posteriormente se hacen las medidas de transporte necesarias (Fig. 2.11). Elegir una técnica de litografía apropiada depende de muchos factores, entre ellos, la geometría de los dispositivos a fabricar, las propiedades de los materiales con los que se trabaje, el compromiso tiempo-resolución, etc. Este último punto es muy importante ya que tiene gran influencia en la viabilidad del proceso de litografía. Para que un proceso de litografía sea satisfactorio es recomendable seguir cuidadosamente una serie de pasos que se describen a continuación.

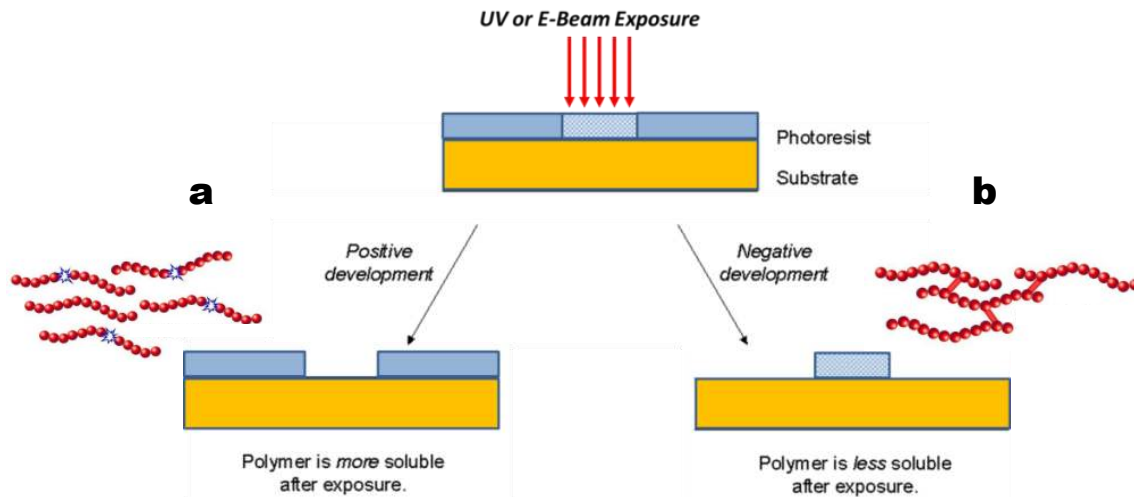


Figura 2.10: Representación esquemática de un proceso de litografía. (a) La resina (positiva) expuesta exhibe la ruptura de las cadenas poliméricas original. Tras el proceso de revelado la parte expuesta se disuelve. (b) la resina (negativa) desarrolla nuevos enlaces entre las cadenas poliméricas tras la exposición. Un proceso de revelado disuelve las zonas no expuestas de la resina, de menor peso molecular [22].

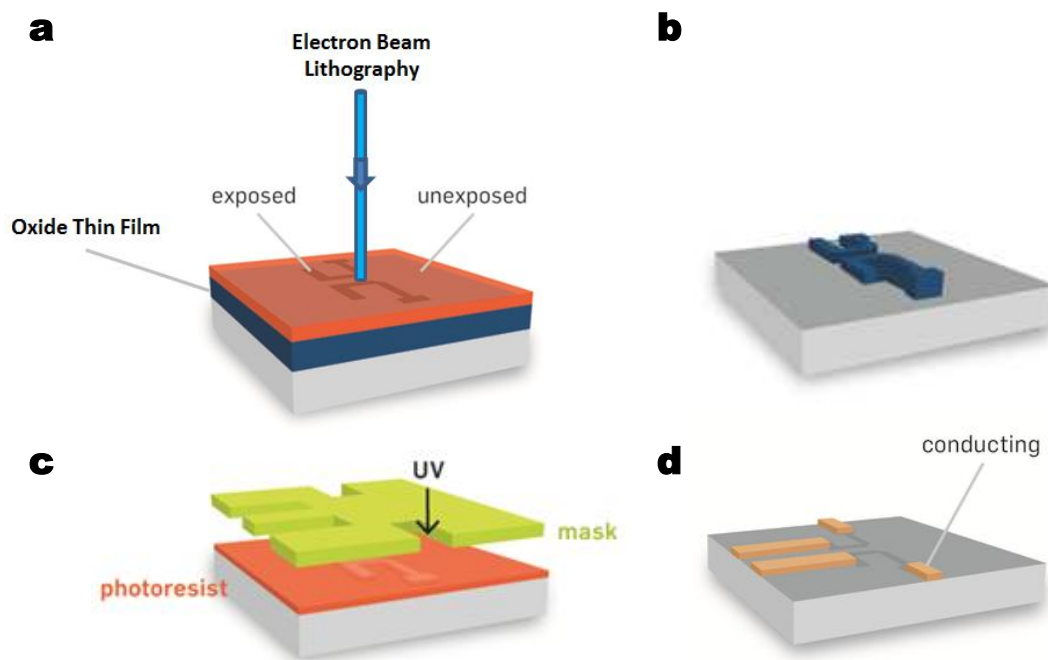


Figura 2.11: Representación esquemática del proceso de litografía electrónica para la fabricación del dispositivo (arriba) y de la elaboración de contactos metálicos mediante litografía óptica (abajo) [22].

Deposición de la Resina

Antes de proceder a depositar la resina necesaria el primer paso es asegurar que la muestra o sustrato estén libres de impurezas en la medida de lo posible

para garantizar una buena adhesión de la resina y no limitar la resolución de la litografía. Para limpiar las películas delgadas de este trabajo se introducen en baños de acetona e isopropanol combinados con ultrasonidos durante 5 minutos cada uno. Posteriormente se secan con un flujo de nitrógeno técnico mediante una pistola garantizando así la eliminación de cualquier impureza que haya podido depositarse en la superficie de la muestra. En este momento se puede proceder a depositar la resina. Para este proceso se emplea la técnica *spin-coating* que consiste básicamente en una centrifugación mediante un cilindro rotante con un orificio sobre el que se coloca la muestra y se fija mediante un sistema de vacío. Posteriormente se deposita una gota de resina ($\sim 40\mu\text{l}$) sobre la superficie de la muestra mediante una pipeta desechable y se acciona el interruptor para que comience el centrifugado. El factor a tener en cuenta aquí es el espesor de la capa de resina el cual se controla mediante unos parámetros del cilindro rotante que son la aceleración de arranque, la velocidad de rotación y el tiempo de rotación. Este sistema permite una deposición uniforme de la resina y un espesor de la misma reproducible en función de los parámetros anteriores pero presenta una limitación en cuanto al espesor de la resina en el perímetro de la muestra. En esta zona se acumula más cantidad de resina de la deseada y da lugar a un espesor que supera varias veces el espesor promedio de la deposición Fig. 2.12.

Como se menciona al principio de este apartado, es muy importante que la muestra esté lo más limpia posible en el momento de la deposición de la resina ya que la presencia de un defecto puntual como puede ser una mota de polvo, puede afectar al espesor de la resina localizada alrededor del mismo. Esto se traduce en una acumulación de resina en zonas próximas al centro de rotación del sustrato y por el contrario, un adelgazamiento en posiciones más alejadas.

El siguiente paso es hacer un *soft-bake* de la resina o también llamado *curado*. Para ello se coloca la muestra con la resina encima de una placa calefactora de temperatura controlable mediante un termostato de manera que la resina se solidifica por la evaporación de su propio disolvente.

Todos los parámetros anteriores, aceleración de arranque, velocidad de rotación, tiempo de rotación, temperatura y tiempo de curado permiten controlar

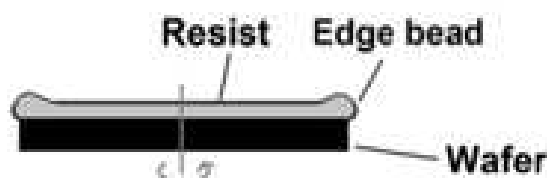


Figura 2.12: Acumulación no deseada de resina en el borde del sustrato, durante la deposición [22].

Resina	nLof-2070	ma-N2409	PMMA A4
Fabricante	Microchemicals	Microresist	MicroChem
Tonalidad	Negativa	Negativa	Positiva
Tipo	Óptica	Óptica y Electrónica	Electrónica
r.p.m.	5.5 - 6.5 krpm	4 - 8 krpm	3 - 8 krpm
Espesor promedio	900 - 700 nm	300 - 190 nm	400 - 280 nm
Tiempo de Curado	70 s / 2 min	90 s	90 s
Temperatura de Curado	115 C	90 C	180 C

Tabla 2.2: Resumen de los parámetros de exposición en función del tipo de resina y del tamaño de los objetos que forman parte de los motivos a litografiar.

el espesor y la homogeneidad de la capa de resina para que esta sea reproducible. En la siguiente tabla se recogen los valores de estos parámetros para las distintas resinas que se emplean en este trabajo.

Litografía por haz de electrones

Los procesos de nanofabricación se realizan mediante litografía electrónica. Para ello se utiliza el sistema *Raith 50* (de *Raith GmbH*) (Fig. 2.9), que combina un microscopio electrónico de barrido *Zeiss EVO 50* junto con su sistema de vacío capaz de alcanzar $10^{-4}mbar$ necesarios para encender el haz de electrones, así como un módulo externo de litografía. Éste está formado por un sistema capaz de controlar la deflexión del haz de electrones dando lugar a una exposición nanométrica local y controlada, un sistema supresor del haz (*beam blanker*), y una plataforma móvil controlada mediante un interferómetro láser (Fig. 2.13). Todo ello se controla mediante un sistema de software externo permitiendo obtener resoluciones del orden de $50nm$, así como el diseño y modificación de patrones arbitrarios de litografía.

La exposición local y controlada se realiza mediante una estrategia de tipo vectorial. La muestra (o el *stage*) permanece en una posición fija y el haz recorre la superficie que se pretende exponer gracias a la deflexión de éste. La superficie que es capaz de recorrer el haz para una posición fija de la muestra se conoce como campo de escritura o *write-field* y suele ser de entre $50 \times 50 \mu m^2$ a $1 \times 1 mm^2$. Para exposiciones mayores a estas superficies, es necesario un desplazamiento del *stage* para una óptima resolución, pudiendo llegar a exponer superficies $\sim cm^2$. En estos casos es necesario realizar un solapamiento (*stitching*) de las diferentes exposiciones producidas en las diferentes posiciones del

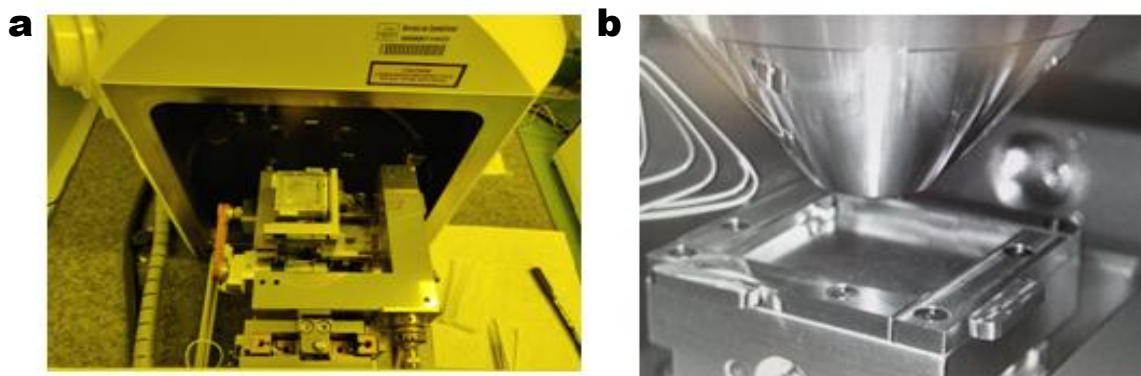


Figura 2.13: (Izquierda) Imagen de la cámara del *SEM* en la que se puede observar la plataforma móvil o *stage* y el interferómetro láser. (Derecha) imagen de infrarrojos que muestra la plataforma móvil y el cañón de electrones.

stage [91]. Cabe destacar que cuanto más grande sea el campo de escritura, menor será la resolución por lo que es necesario buscar un compromiso entre ambos.

Dentro de un mismo campo de escritura, la exposición se realiza mediante un método de punteado de tipo *pixel-by-pixel*. La distancia entre puntos (*step size* $\sim nm$) y el tiempo que el haz permanece inmóvil en cada uno de ellos (*dwell-time* $\sim ns$) son controlados directamente desde la interfaz del microscopio. El diámetro de cada punto viene determinado tanto por el *dwell-time* como por la dosis de exposición. El concepto de dosis representa la cantidad mínima de carga necesaria por cada punto para lograr la completa ruptura (o unión) de los polímeros de la resina positiva (o negativa) y depende fuertemente de diferentes parámetros como son la sensibilidad y el espesor de la resina ($\sim 10-100 nm$), el voltaje de aceleración de los electrones ($\sim 10KV$ en este caso) y la superficie de la muestra utilizada. La corriente del haz de electrones juega un papel principal en el calibrado de la dosis y se determina al principio de cada litografía. Para ello se hace pasar el haz a través de una *Faraday Cup*, que a su vez está conectada a un picoamperímetro con el que se mide la intensidad de corriente. Establecidas la corriente del haz y la dosis deseada, el software determina automáticamente el *dwell-time* necesario para cada punto.

La utilización de la dosis correcta es crucial para la optimización de un patrón determinado. Para ello es necesario realizar un proceso previo de calibración donde mediante la litografía de diferentes patrones con distintos detalles y configuraciones se determina la dosis óptima para el patrón a litografiar. La Fig. 2.14 muestra un ejemplo de patrón de calibración donde los diferentes colores representan las diferentes dosis utilizadas.

La Tab. 2.3 muestra un resumen de los diferentes parámetros que se utilizan para la realización de los diferentes patrones sobre las muestras de esta tesis.

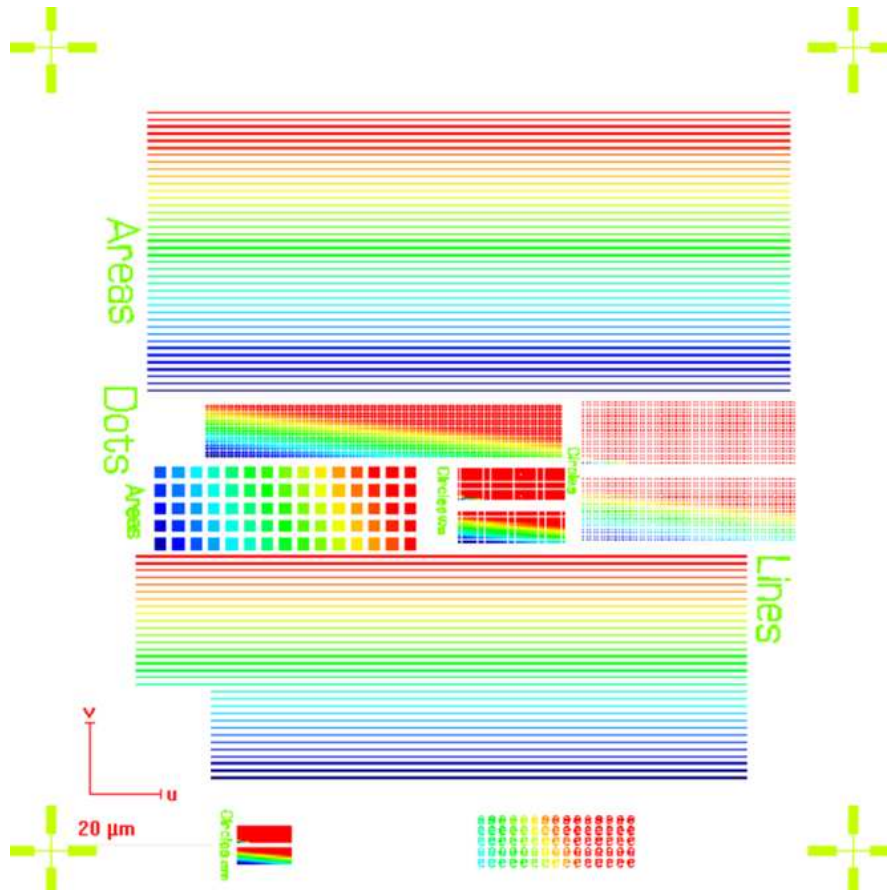


Figura 2.14: Ejemplo de patrón de calibración donde los diferentes colores representan las diferentes dosis utilizadas.

La resina más común utilizada en este tipo de resina corresponde a la *PMMA* $X\%$ donde X es el disolvente, pudiendo ser principalmente clorobenceno (C) o anisol (A), y $\%$ es el tanto por ciento de la concentración. Por ejemplo, el *PMMA C2* presenta un espesor menor una vez se deposita resultando en una mayor resolución con respecto a la *PMMA C4*.

Transferencia del patrón

Tras depositar la resina se introduce la muestra en la cámara, se coloca en el *stage* fijada con una pinza y se lleva el sistema a una presión inferior a 10^{-4} mbar. A continuación se enciende el haz de electrones y se establece la corriente deseada. Antes de iniciar el proceso de litografía es necesario optimizar los parámetros de la columna del microscopio electrónico de barrido (*SEM*) y se hace mediante un ordenador que controla el microscopio [91,92].

Tras la optimización del haz, mediante la aplicación *Raith Universal EBL*

	Resina	Ma-N2403	PMMA 950K A4	nLof-2070
	Tonalidad	Negativa	Positiva	Negativa
Developer	Tipo	Ma-D525 (Micro Resist)	MIBK:IPA (3:1) (Sigma-Aldrich)	MF319 (Microposit)
	Temperatura de uso	18-20°C	18-20°C	18-20°C
	Tiempo de revelado	70 sec.	30 sec.	85 sec.
Stopper	Tipo	Agua desionizada	IPA (Sigma-Aldrich)	Agua desionizada
	Temperatura de uso	~15°C	18-20°C	18-20°C
	Tiempo de inmersión	15-30 sec.	30 sec.	30 sec.

Tabla 2.3: Resumen de los parámetros de exposición en función del tipo de resina y del tamaño de los objetos que forman parte de los motivos a litografiar. La litografía de microestructuras supone la exposición exclusiva de áreas, debido a que las líneas y los *dots* generalmente son utilizados para litografías de objetos nanométricos.

Tool, se prepara todo lo necesario para iniciar el proceso de litografía:

1. Se define el sistema de coordenadas
2. Se mide la corriente y se calcula el *dwel-time*
3. Se define y se alinea el *write-field*
4. Se define el patrón digital y su posición respecto a la muestra
5. Se ejecuta la exposición

Para las muestras de este trabajo de tesis se utilizan mayormente sustratos cuadrados y rectangulares para los que se definen unos ejes de coordenadas y se asigna el origen del sistema de referencia cartesiano relativo en la esquina inferior izquierda (punto "O" de la Fig.2.15) y se fija el ángulo de rotación mediante un segundo punto en la esquina inferior derecha (punto "d" de la Fig. 2.15).

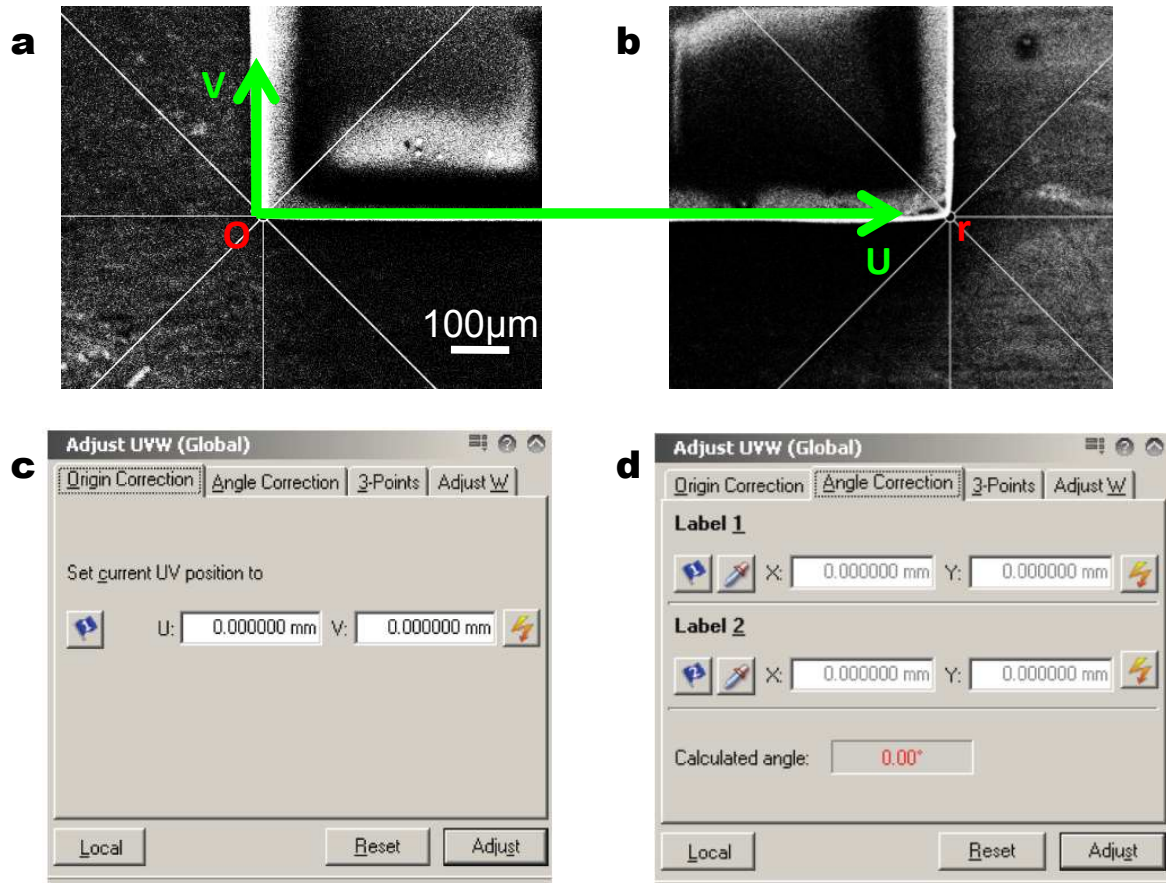


Figura 2.15: Definición del nuevo sistema de coordenadas relativo UV . (a) Imagen SEM que enseña la alineación del origen O con una esquina del sustrato mientras que (b) muestra la esquina adyacente, alineada al puntero. (c) y (d) representan las ventanas del Raith Software para el ajuste respectivamente del origen y del ángulo de nuevo sistema de referencia.

Seguidamente se posiciona el cañón en la *Faraday Cup* y se fija la intensidad de corriente del haz de electrones mediante el picoamperímetro y en este momento se establecen los valores de la dosis y del *step-size* (Tab. 2.3) y se calcula el *dwell-time*.

Por último se necesita alinear el *write-field* (WF) y para ello es necesario tener en cuenta lo que se llama área de trabajo (*working-area*, WA) que representa la superficie total que ocupa el motivo que se pretende litografiar. Si $WF=WA$ no implica solapamiento o *stitching*, mientras que si $WA>WF$ el área de trabajo se compone de un número entero de campos de escritura y es necesario un movimiento preciso del *stage* que permita solapamiento Fig. 2.16. La posición del *stage* en el último caso se controlan por un interferómetro láser situado en el interior de la cámara de trabajo que proporciona una precisión nanométrica. Para alinear el campo de escritura se ejecuta una instrucción del *software* que facilita la corrección de parámetros como la posición relativa de la muestra con respecto al *stage*, el ángulo de rotación y la magnificación [93].

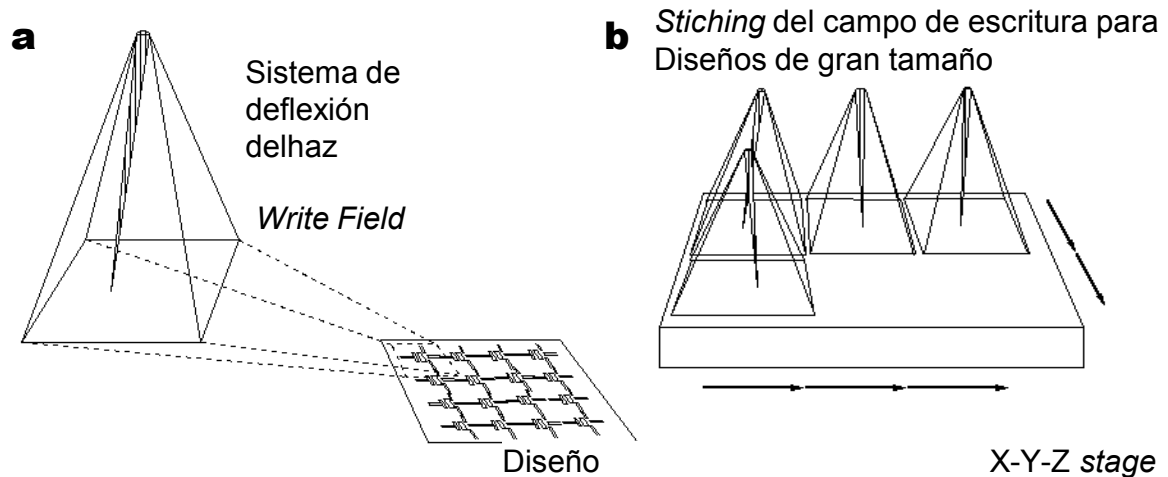


Figura 2.16: (a) Campo de escritura (WF) individual: esquema de la geometría de la deflexión del haz de electrones. (b) Secuencia ordenada de WF cuando la exposición global del patrón se compone por un área de trabajo que es mayor que la del propio WF .

Finalmente se carga el patrón a litografiar desde la *position list* incorporada al *software* y se ejecuta la exposición.

Consideraciones Durante la Litografía Electrónica

El hecho de que este tipo de litografía sea realice mediante electrones provoca que la nanofabricación sobre materiales aislantes se dificulte debido a una acumulación de la carga electrónica sobre la superficie de las muestras. Como consecuencia, en aquellos casos en los cuales el campo de trabajo es mayor al campo de escritura se observa un efecto de desplazamiento de varias micras de longitud entre los diferentes campos de escritura, ver Fig. 2.17.

Con la finalidad de solucionar este efecto, se puede reducir la corriente del haz de electrones hasta valores de 200 pA - 1nA.

Revelado

Una vez realizada la litografía es necesario realizar el proceso de revelado en el cual se retira la parte de resina soluble en el líquido revelador y se obtiene el patrón deseado. En este proceso es importante controlar el tiempo de revelado puesto que debe ser el óptimo para que el patrón quede perfectamente definido. Para parar el proceso de revelado se introduce la muestra en un líquido detergente que hace de *stopper* que disuelve y elimina el revelador. Éste último puede ser agua desionizada u otro compuesto químico. Finalmente se seca la muestra mediante un flujo de gas de nitrógeno técnico.

Típicamente la resina remanente se utiliza como protección ante un comido húmedo (químico) o iónico (físico). Sin embargo, también se puede utilizar

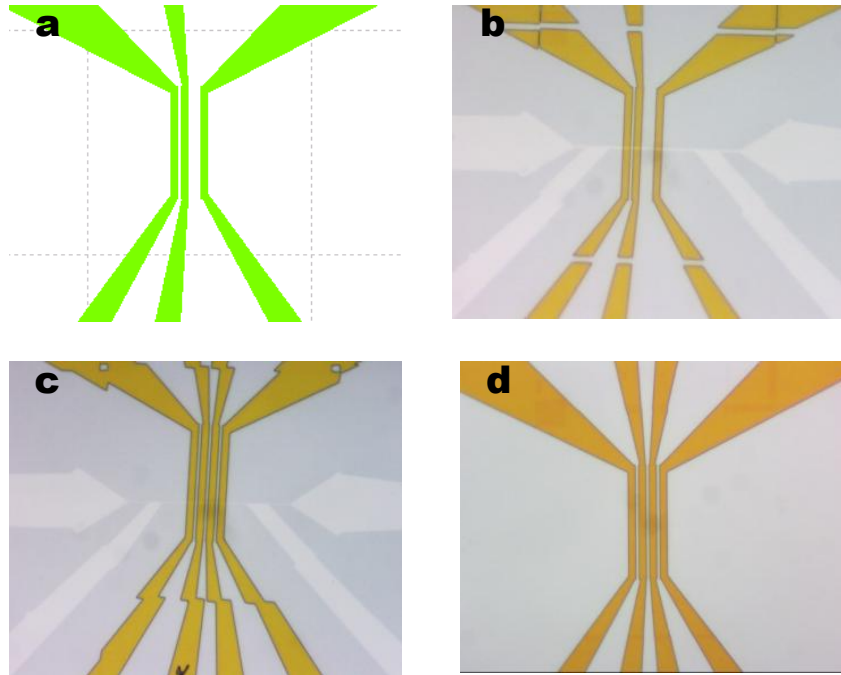


Figura 2.17: Imagen óptica que muestra el efecto de *charging* en muestras de *STO* (aislante) con patrones de *LCMO* con resina *ma – N2403*. (a) Porción del diseño del patrón deseado (en verde). Las líneas discontinuas marcan el perímetro de los campos de escritura de $100 \times 100 \mu m^2$. (b) Resultado de la litografía (a $10kV$ y $1nA$ de corriente) del patrón (a) sobre un sustrato de *STO* (fondo azul) con una nanoestructura de *LCMO* (en blanco). La imagen muestra una evidente deformación del patrón de resina (color naranja) en correspondencia del perímetro de los campos de escritura que se atribuye al efecto de *charging*. (c) Otro ejemplo de bizarra deformación del patrón de una muestra similar a la (b), con los mismos parámetros de exposición. (d) Resultado óptimo de la exposición del mismo patrón que (c). El efecto de *charging* desaparece por completo reduciendo la corriente del haz de electrones de $1nA$ a $200pA$. Imágenes cedidas de [22].

como máscara para evitar depositar materiales sobre una zona determinada de la muestra. En ambos casos es necesario realizar posteriormente un proceso de *lift-off* en el cual se elimina completamente la resina remanente. En Tab. 2.4 y Tab. 2.5 muestran un resumen de los parámetros utilizados para el revelado y *lift-off* de las resinas utilizadas durante los diferentes procesos de litografía electrónica.

2.3.1.1. Técnicas de Ataque

Ataque húmedo (químico)

El ataque químico consiste en la inmersión de la muestra en un agente químico durante un periodo de tiempo con la finalidad de eliminar el material deseado. A continuación, el ataque es detenido mediante la inmersión de la muestra en una dilución conocida como *stopper*. La Tab. 2.6 muestra los parámetros que se utilizan para los ataques químicos de esta tesis.

	Resina	Ma-N2403	PMMA 950K A4	nLof-2070
	Tonalidad	Negativa	Positiva	Negativa
Developer	Tipo	Ma-D525 (Micro Resist)	MIBK:IPA (3:1) (Sigma-Aldrich)	MF319 (Microposit)
	Temperatura de uso	18-20°C	18-20°C	18-20°C
	Tiempo de revelado	70 sec.	30 sec.	85 sec.
Stopper	Tipo	Agua desionizada	IPA (Sigma-Aldrich)	Agua desionizada
	Temperatura de uso	~15°C	18-20°C	18-20°C
	Tiempo de inmersión	15-30 sec.	30 sec.	30 sec.

Tabla 2.4: Resumen de parámetros para el proceso de revelado de las diferentes resinas.

		ma-N2403	PMMA 950K A4	PMMA 950K C2
Lift off post Wet-etching	Liquido Remover	Acetona o mr-Rem660 (Micro Resist)	Acetona o MIBK (Sigma-Aldrich)	
	Tiempo en ultrasonidos	5 min.		
Lift off post Deposición de Metales	Liquido Remover	Acetona o mr-Rem660 (Micro Resist)	Acetona o MIBK (Sigma-Aldrich)	
	Tiempo en ultrasonidos	2 sec.		
Lift off post comido RIE	Liquido Remover	Acetona (o acetona caliente a 60 C)		
	Tiempo en ultrasonidos	45-60 min.	30-45 min.	

Tabla 2.5: Resumen de parámetros para el proceso de *lift-off* de las diferentes resinas.

	Tipo de Óxido Complejo	LSMO	YBCO
Solución Ácida	Compuesto químico	4 ml HCl 35 wt% + 4 ml KI 3M in H ₂ O + 70 ml H ₂ O	0.05% de HCl en H ₂ O
	Temperatura de uso	18 - 20 C	
	Rate de comido	~15 nm/sec	~50 nm/sec
Stopper	Tipo	Agua Desionizada	
	Temperatura de uso	~15 C	
	Tiempo de inmersión	15-30 sec.	

Tabla 2.6: Resumen de los parámetros de decapado químico para las manganitas y el cuprato superconductor *YBCO*.

Ataque iónico (físico)

El ataque físico de las muestras consiste en el bombardeo de iones de Ar sobre la superficie de la muestra de manera que se produce un “comido” del material óxido, mientras que la resina permanece casi intacta.

Durante esta tesis se utiliza el modelo *IBE Plassys* localizado en la Unité Mixte de Recherche (*CNRS-THALES*) de París, Fig. 2.18. Éste está equipado con un cañón de iones y un sistema de bombas que consta de turbomolecular y rotatoria capaces de alcanzar niveles de vacío del orden de 10⁻⁷ mbar. Con la finalidad de evitar un sobrecalentamiento de la muestra, ésta se sitúa sobre un soporte refrigerado a 5°C. La corriente del haz de iones se minimiza hasta valores de 80 mA.

El proceso de ataque es monitorizado *in-situ* mediante un medidor de masas que permite seleccionar los diferentes elementos. A modo de ejemplo explicativo, en la Fig. 2.19 se presenta el espectro de masas en función del tiempo para el Ba, Sr y Ti correspondiente al ataque de una muestra de 3 nm de Al, 15 nm de Py, 250 nm de *YBCO* sobre un sustrato de *STO*. Como se puede apreciar el comido del *YBCO* comienza a partir del minuto 2 y se extiende durante los próximos 15min. El ataque de las diferentes capas finas finaliza en el momento en el que la intensidad del Ba disminuye y las del Sr y Ti aumentan, indicando el inicio del comido del sustrato.



Figura 2.18: Modelo *IBE Plassys* localizado en la *Unité Mixte de Recherche (CNRS-THALES)* de París con el que se hace el comido iónico de las muestras de esta tesis.

2.3.1.2. Fotolitografía

Para procesos de microfabricación, donde la resolución necesaria es $\sim \mu m$, se utiliza la litografía óptica o fotolitografía. En este caso el patrón de exposición se controla mediante una máscara física situada en contacto con la superficie de la muestra. Las regiones donde la irradiación UV incide sobre la resina permite romper (o unir) los diferentes polímeros de ésta.

Para este caso concreto se utiliza un sistema *Karl Suss Mask Ligner* mode-

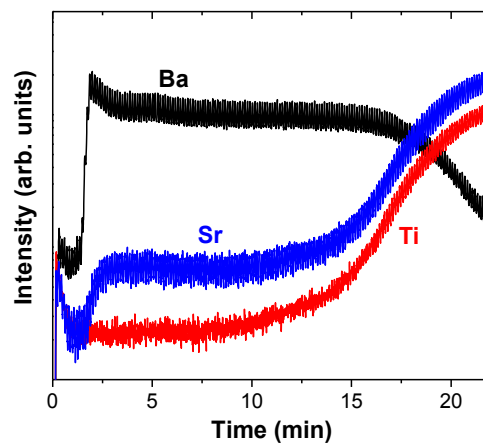


Figura 2.19: Espectro de masas en función del tiempo para el Ba, Sr y Ti correspondiente al ataque de una muestra de 3 nm de Al, 15 nm de Py, 250 nm de *YBCO* sobre un sustrato de *STO*.

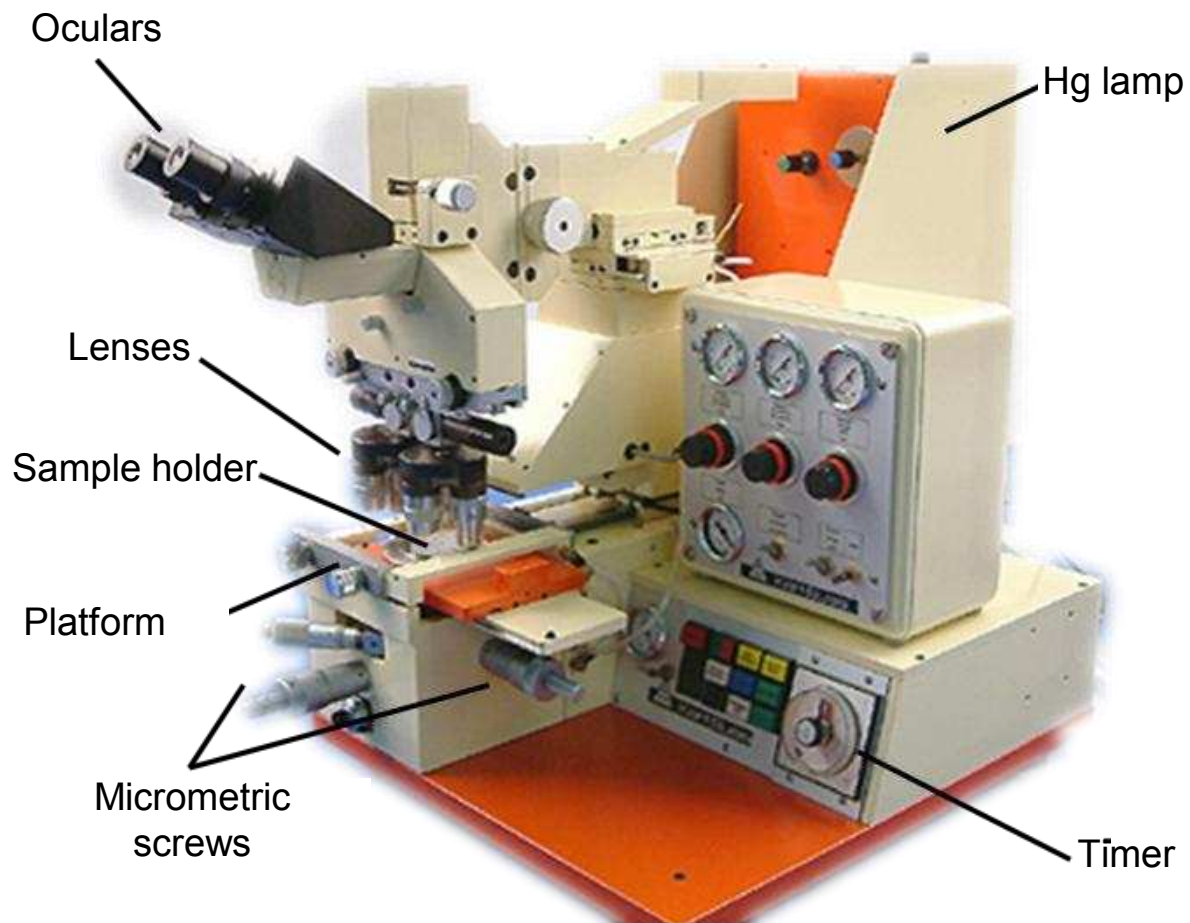


Figura 2.20: Foto del equipo de litografía *KarlSussMaskAligner* en la que se indican las partes principales.

lo *MJB3 UV40* que permite exponer con luz ultravioleta grandes superficies, Fig.2.20. Este modelo está equipado con una lámpara de mercurio de 350 W de potencia capaz de proporcionar longitudes de onda entre 350 nm y 450 nm, un microscopio óptico y un alineador de máscara con capacidad para sustratos de hasta 3 pulgadas de diámetro y 3 mm de grosor.

En analogía con la litografía electrónica, el uso de una dosis de iluminación correcta permitirá alcanzar la resolución óptima. En este caso la dosis se determina por la energía mínima por unidad de superficie que proporciona la radiación ultravioleta para la transferencia del patrón litográfico de la máscara a la muestra. Este parámetro está controlado por el tiempo de exposición que se puede modificar con una resolución de 0.1s. Para las resina negativa *nLof-2070* el tiempo de exposición a la luz UV (línea espectral *h* del mercurio - 405 nm) es de 6,3 segundos para un espesor de en torno a una micra.

Revelado

De forma análoga al proceso de litografía electrónica, tras la exposición la resina se somete a un proceso de revelado. Para ello se introduce la muestra en un líquido revelador *MF319* (del fabricante Microposit) durante 85 segundos y se utiliza agua desionizada como stopper durante 30 segundos (Tab. 2.4). El agua desionizada que se utiliza se obtiene de una máquina específica instalada en la sala blanca.

En el caso de que se quiera utilizar la resina como protección ante un comido físico o químico es necesario realizar un proceso de endurecimiento post-revelado con la finalidad de mejorar la estabilidad térmica y mecánica de la fotoresina. Este proceso es sobretodo importante cuando la resina que se utiliza es la *nLof-2070*. El proceso de endurecimiento consiste en exponer la resina a la luz ultravioleta durante 2 min y un post-recocido de ésta durante 150 segundos a 110°C.

La Tab. 2.7 muestra los parámetros optimizados de revelado y *lift-off* de la resina al final de la nanofabricación.

2.4. Deposición de Metales

Para la realización de medidas de magnetotransporte de las muestras de este trabajo de tesis es necesario depositar unos contactos metálicos del orden de $\sim mm^2$ sobre los cuales se conectan los cables que unen las estructuras litografiadas con los equipos de medida. Es imprescindible que estos metales tengan una buena adherencia con el óxido complejo con la finalidad de presentar

		Tipo de Resina	
		ma-N2403	nLof-2070
Lift off post comido húmedo	Líquido remover	Acetona o mr-Rem660 (Micro Resist)	
	Tiempo en ultrasonidos	1 minuto	
Lift off post deposición de metales	Líquido remover	Acetona o mr-Rem660 (Micro Resist)	
	Tiempo en ultrasonidos	5 segundos	

Tabla 2.7: Resumen de los parámetros de *lift-off* optimizados para cada fotoresina y proceso de comido o deposición utilizado.



Figura 2.21: Equipo de evaporación térmica por efecto Joule del GFMC.

una buena estabilidad mecánica y térmica durante las medidas. Por otro lado, los metales deben de presentar una función de trabajo similar a la del material a estudiar con la finalidad de obtener un contacto óhmico entre ambos. Durante este trabajo, la deposición de los contactos metálicos se realiza mediante la técnica de evaporación térmica por efecto Joule con el evaporador del Grupo de Física de Materiales Complejos (*GFMC*) (Fig. 2.21). El metal que se considera óptimo es la plata cuya función de trabajo $\Phi_{\text{Ag}} = 4.26\text{-}4.74$ eV es muy similar a la de la manganita *LSMO* ($\Phi_{\text{LSMO}} \approx 4.7$ eV) y cuya adherencia mecánica con la manganita es óptima.

2.5. Caracterización Magnética

2.5.1. Microscopía de Fuerza Magnética (MFM)

Para la caracterización magnética de los nanohilos, una de las técnicas que se emplea en esta tesis es la microscopía de fuerzas magnéticas con capacidad de medir en función de la temperatura. Las medidas se realizan en colaboración con el grupo de investigación de la profesora Mar García Hernández del *Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid* a cargo de la Dra. Carmen Munuera.

El *MFM* es una variante del microscopio de fuerzas atómicas que se utiliza para estudiar superficies con respuesta magnética. El funcionamiento es similar al *AFM* salvo que la punta del *MFM* tiene un recubrimiento magnético que la hace sensible a campos magnéticos. Por este motivo esta técnica es idónea para obtener imágenes de la distribución espacial del campo magnético.

Este sistema permite los dos modos de trabajo del *AFM*, pero el modo *tapping* ofrece mayor sensibilidad. En la Fig. 2.22 se muestra un esquema del funcionamiento: el *cantilever* vibra cerca de la frecuencia de resonancia con una amplitud y una fase desplazada respecto de la señal de excitación. El *cantilever* se comporta como si su constante elástica estuviera modificada debido a la interacción magnética punta-muestra, por ejemplo, si la interacción es de tipo atractivo, la constante elástica disminuye y por tanto, también disminuye la frecuencia de resonancia. De forma análoga, si la frecuencia de resonancia se ve alterada, provoca un cambio en la amplitud y la fase del *cantilever*. La modulación de la amplitud es el método que se utiliza para mapear las variaciones laterales.

En la técnica *MFM*, la imanación de la punta tiene una dirección perpendicular al plano de la muestra (por su propia anisotropía de forma) pero su sentido no es posible definirlo con exactitud, por tanto, las imágenes que se obtienen provienen de los campos de dispersión (*strayfields*) que producen las cargas magnéticas internas. El momento magnético de los *strayfields* es también perpendicular al plano de la muestra, por tanto, cuando la punta interactúa con la muestra se detectan los cambios en la polaridad de los *strayfields*.

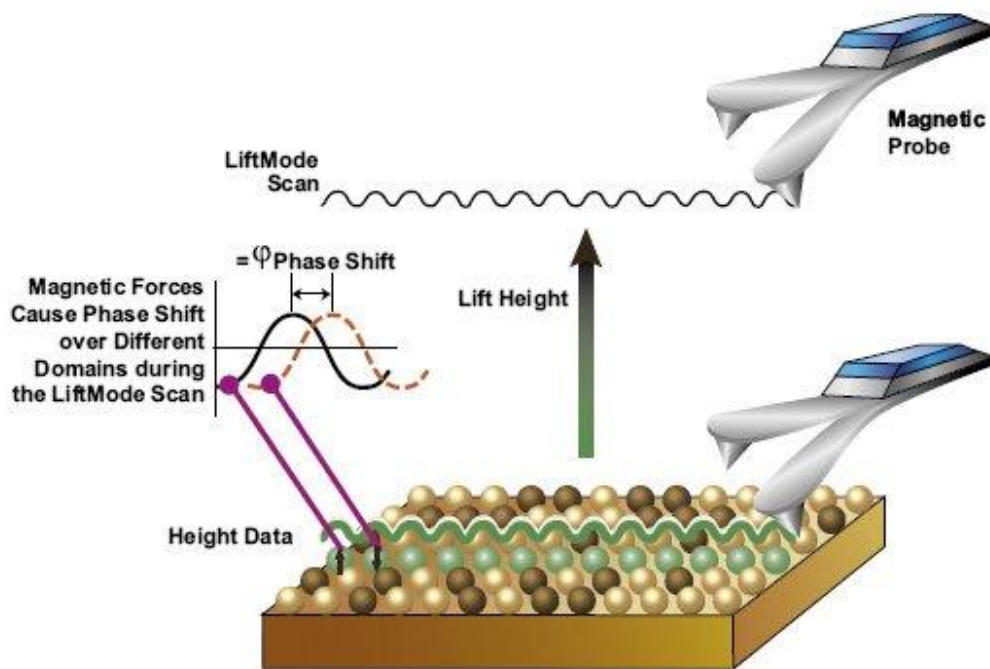


Figura 2.22: Esquema del funcionamiento de MFM [94].

Dependiendo si la polaridad de los campos de dispersión es paralela o perpendicular al momento magnético de la punta se observa un contraste distinto, lo que indica un cambio en la fase magnética

Para la caracterización magnética a escala nanométrica de las muestras se utiliza un Microscopio de Fuerzas Atómicas de la marca *Nanomagnetics Instruments Ltd.* Este microscopio es compatible con un criostato diseñado en el Laboratorio de Microscopías de Campo Cercano del grupo *2D-Foundry (ICMM-CSIC)* que contiene un electroimán superconductor de tres ejes. Con este electroimán es posible tener un vector de campo magnético tridimensional capaz de rotar 360° con una magnitud entre 0-1.2 T. Si el campo aplicado se mantiene en el eje z , el valor máximo alcanza 5 T [95]. El sistema *AFM*-criostato permite, por tanto, realizar medidas en un rango de temperatura 300 y 1.8 K, con campo magnético aplicado.

Para los experimentos que se presentan en esta tesis se utilizan puntas magnéticas comerciales de *Nanosensors* ($k \approx 2.8 \text{ N/m}$, $f \approx 75 \text{ kHz}$) cuyo recubrimiento magnético es una aleación de Cr-Co.

2.5.2. Técnicas de absorción basadas en radiación sincrotrón

La radiación sincrotrón es una fuente de luz blanca que cubre energías desde el infrarrojo hasta los rayos gamma, lo que permite obtener la estructura electrónica de los materiales mediante el estudio de transiciones electrónicas. Además, la radiación sincrotrón se caracteriza por estar polarizada, o lo que es lo mismo, la dirección del campo eléctrico de los fotones tiene una dirección. La posibilidad de seleccionar la energía de la radiación incidente mediante monocromadores y la viabilidad para controlar su polarización permite el desarrollo de técnicas con sensibilidad elemental y magnética.

En particular, las medidas de esta tesis se han realizado en un sincrotrón con energías para los fotones en el *soft X-ray range* (200 - 2000 eV). Este rango de energías es interesante dado que da acceso a las transiciones $2p \rightarrow 3d$ de los metales de transición.

2.5.2.1. Espectroscopía de absorción de rayos-X

Desde su descubrimiento en 1895, los rayos-X han ilustrado el desarrollo de la ciencia del siglo XX. Los rayos-X son ondas electromagnéticas con una longitud de onda muy pequeña que pueden penetrar en cuerpos opacos a la luz visible y ser absorbidos excitando electrones de los niveles profundos del átomo. La espectroscopía de absorción de rayos-X (*XAS*) estudia el efecto de la absorción de fotones en la materia y una de sus posibles aplicaciones es el estudio del magnetismo de los metales de transición (*TM*).

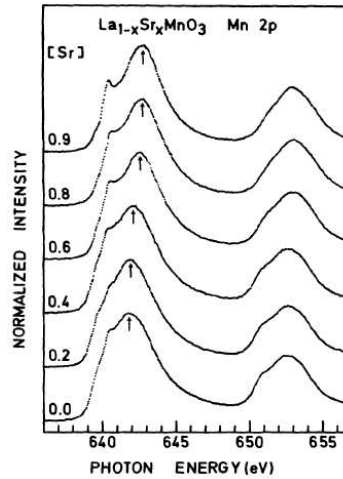


Figura 2.23: Espectro XAS en el borde L del Mn para $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ en función del nivel de dopado x . A medida que aumenta el valor de x se observa un corrimiento del espectro hacia energías mayores [96].

En esta técnica un fotón es absorbido por un átomo para dar lugar a una transición de un electrón (fotoelectrón) hasta un estado vacío por encima del nivel de Fermi. Para excitar un electrón la energía del fotón tiene que ser igual o mayor a la energía del nivel del núcleo, la cual es característica de cada elemento [97]. Cuando se supera esta energía se observa un aumento en la intensidad de absorción. Los electrones de los niveles $2p$ de los *TM* pueden saltar a niveles $3d$: $2p_{3/2} \rightarrow 3d$ y $2p_{1/2} \rightarrow 3d$, lo que se conoce como bordes L_3 y L_2 respectivamente.

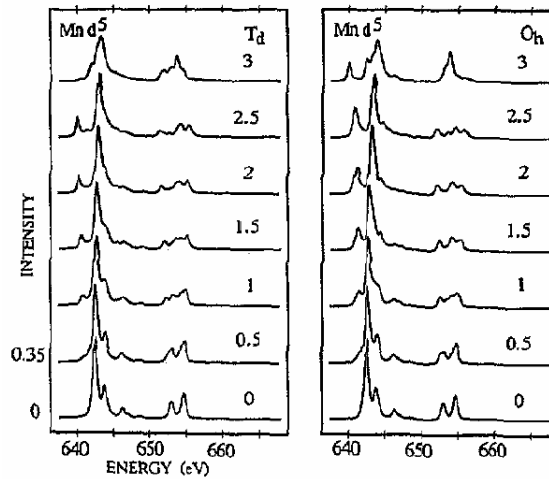


Figura 2.24: Espectro XAS en los bordes L_2 y L_3 para un ión divalente de Mn para distintos campos cristalinos en eV en simetría tetraedro (izquierda) y simetría octaedro (derecha) [98].

Dado que los electrones $2p$ transitan a niveles $3d$ parcialmente desocupados, la forma del espectro de absorción y la posición de los picos depende de la

valencia $3d$ que tome el TM . En el caso de la manganita $L_{1-x}Sr_{1-x}MnO_3$ el espectro depende de la valencia que tome el Mn acorde al dopado de huecos x , como se indica en la Fig. 2.23.

La absorción depende de la polarización de la luz y en el caso de utilizar luz circularmente polarizada, la absorción va a depender de la magnetización. Esto da lugar a lo que se conoce como Dicroísmo Circular Magnético ($XMCD$). El $XMCD$ es la diferencia entre la absorción de la luz circularmente polarizada a derechas y a izquierdas. En la Fig. 2.25 se ilustra la primera medida $XMCD$ en el *soft X-ray range* en el borde $L_{3,2}$ del hierro [99].

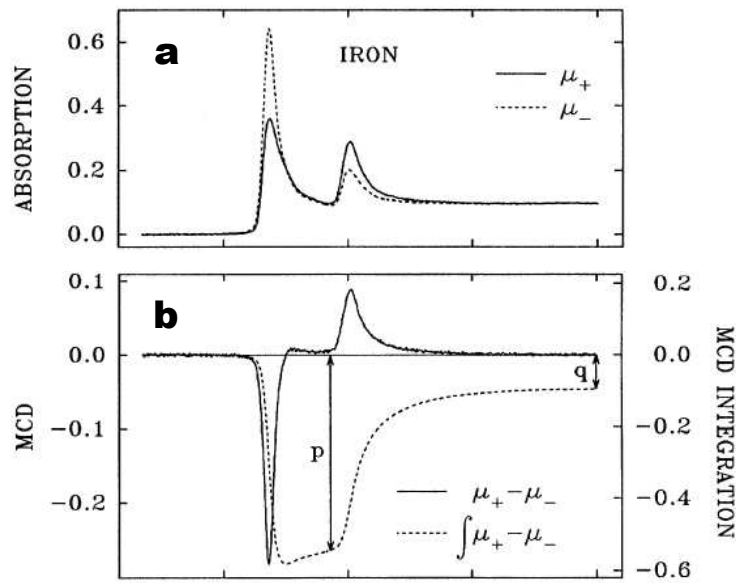


Figura 2.25: (a) Espectro de absorción en el borde $L_{3,2}$ del Fe. (b) Espectro $XMCD$ en el borde $L_{3,2}$ del Fe. P y q son las integrales resultantes del análisis de la regla de la suma [99].

2.5.2.2. Dicroísmo circular magnético

El dicroísmo circular magnético ($XMCD$) es una espectroscopía que utiliza rayos-X para explorar la estructura y las propiedades magnéticas de la materia. Fue sugerida por Erskine y Stern [100] y demostrada experimentalmente por Schütz et al. en 1987 [101]. El $XMCD$ ofrece la posibilidad de extraer información sobre el momento magnético orbital y el espín de elementos de materiales magnéticos, así como su anisotropía. Si la polarización de espín de las transiciones está alineada con la polarización de espín de los estados desocupados, la sección transversal de absorción es mayor que en el caso contrario, cuando la polarización de espín de los electrones excitados es antiparalela a la polarización de espín de los estados desocupados [102]. Por tanto, la absorción es proporcional a la magnetización a lo largo del haz incidente y se pueden obtener medidas de dicroísmo cambiando la helicidad de la luz o bien cambiando la magnetización de la muestra. La energía del fotón a la que ocurre este efecto

depende de la energía de unión de los niveles elementales del núcleo y por tanto puede utilizarse para identificar distintos elementos por separado.

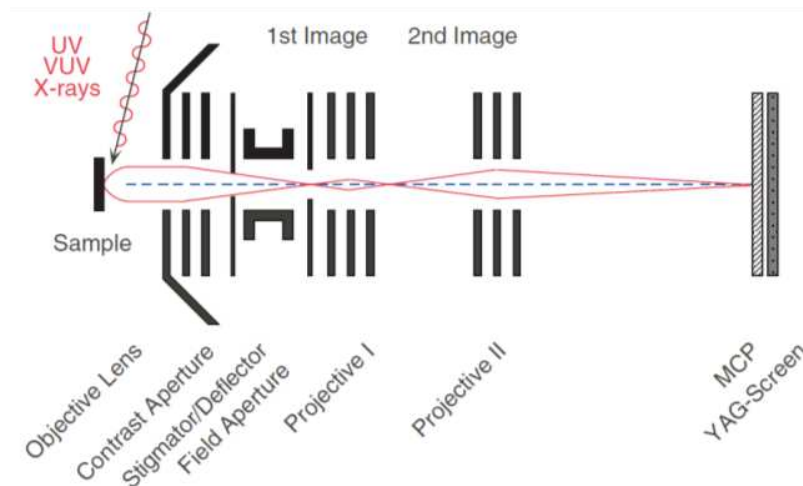


Figura 2.26: Esquema general de un microscopio de emisión de electrones que utiliza fotoexcitación [103].

El origen físico del *XMCD* puede explicarse con el modelo propuesto por Schutz et al. [104]. Primeramente se excita un electrón $2p$ por un fotón que lleva un momento angular \hbar (para la luz circularmente polarizada a derechas) o $-\hbar$ (para la luz circularmente polarizada a izquierdas), que se transfiere completamente a un electrón del núcleo, debido a la conservación del momento angular. Como ya se ha comentado, el espín del fotoelectrón siempre será paralelo a la dirección de propagación del fotón, pero su signo depende de la helicidad de la radiación incidente y del acoplamiento espín-órbita ($(l+s)$ en el borde L_3 y $(l-s)$ en el borde L_2), por tanto, la luz circularmente polarizada a derechas (izquierdas) selecciona electrones con espín *up* (*down*) en el borde L_3 y electrones con espín *down* (*up*) en el borde L_2 [105]. En segundo lugar, una vez los electrones han alcanzado el nivel $3d$ tienen dos posibles opciones: por una parte pueden regresar a un nivel $2p$ emitiendo energía (fluorescencia) y por otra parte pueden decaer al nivel $2p$ cediendo su energía a un electrón (electrón Auger) que escapa del material. Los electrones Auger, en su caminos hacia el exterior de la muestra sufren múltiples colisiones cediendo parte de su energía a otros electrones generando así una cascada de electrones secundarios (Fig. 2.6) cuyo número es proporcional a la absorción [106, 107].

El *XMCD* se puede utilizar en un microscopio de fotoemisión de electrones (*PEEM*) lo cual permite obtener una técnica de microscopía de sensibilidad elemental y magnética con una resolución de en torno a 30 nm. El *PEEM* es un microscopio electrónico cuyo montaje se describe en la Fig. 2.26. Entre la muestra y la primera lente se establece un voltaje de 10 KV que sirve de colimador para los electrones secundarios. Una pantalla final recoge los electrones

en función de la posición y se mide el número de electrones secundarios en función de la energía del fotón. Para las medidas se incide con energías donde la señal magnética es máxima, en este caso, a la energía del borde L_3 del Mn con rayos X circularmente polarizados a derechas y a izquierdas.



Figura 2.27: PEEM instalado en la línea micro foco PGM del sincrotrón BESSY con control completo de la polarización de los rayos X (UE49-PGMa).

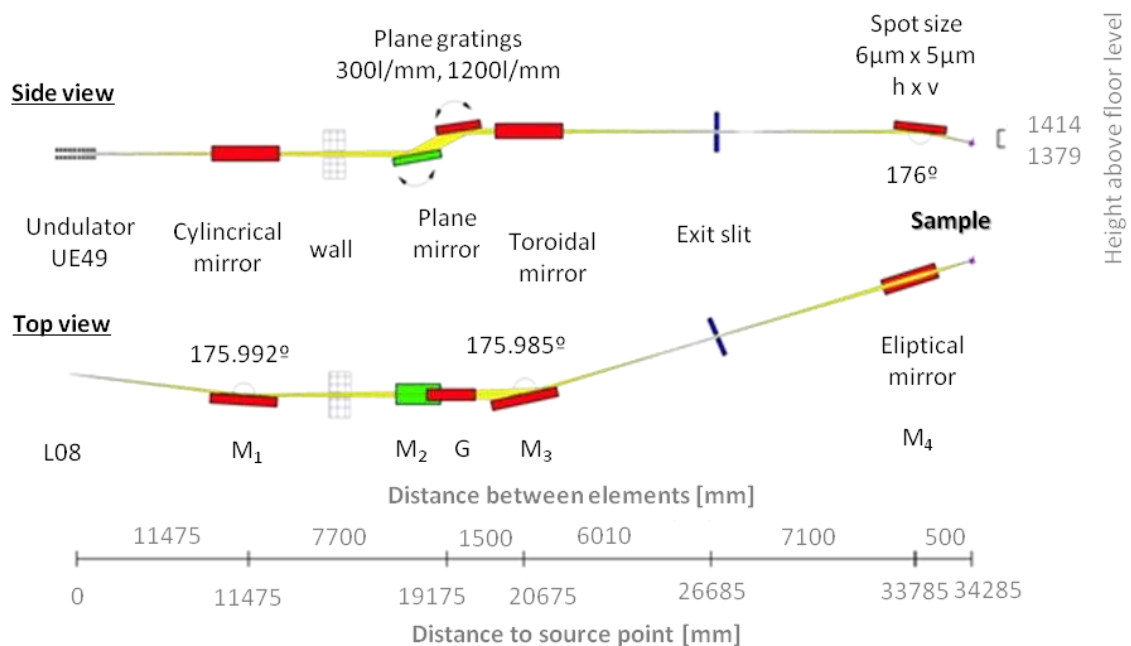


Figura 2.28: Representación esquemática del recorrido del haz de rayos X. Perfil (arriba) y alzado (abajo).

Las medidas de PEEM se realizan en el espectrómetro del sincrotrón de BESSY del *Helmholtz Zentrum Berlin für Materialien und Energie* en colaboración con el Dr. Sergio Valencia. El sistema cuenta con un novedoso microscopio

pio de fotoemisión instalado en una línea micro foco PGM con control completo de la polarización de los rayos-X (UE49-PGMa) (Fig. 2.27, Fig. 2.28). La conjunción de las capacidades de microscopía de *PEEM* y el control de polarización de la radiación sincrotrón, hacen del *PEEM* la herramienta ideal para la investigación de nanoestructuras magnéticas en escalas por debajo de la micra, mediante mapas químicos (*XAS*) e imágenes magnéticas (*XMCD*) [108–110].

2.6. Caracterización eléctrica y de magnetotransporte

Para caracterizar eléctricamente las muestras, es necesario evitar la contribución de la resistencia de contacto. La resistencia de las películas delgadas y los dispositivos planares se mide utilizando el método de cuatro puntas (Fig. 2.29), derivado del método de van der Pauw [111]. En la superficie de la muestra se definen cuatro contactos eléctricos mediante evaporación de plata como se explica anteriormente en este capítulo y después se conectan al cableado con pintura de plata.

El sistema de medida es un criostato de ciclo cerrado que se compone por un expansor de *Advanced Research Systems* modelo *DE-202* junto con un compresor de helio *APD Cryogenics HC-2D*. El sistema funciona con la expansión de gas de He puro altamente comprimido en un ciclo de Gifford McMahon a través de los capilares en dos pasos: a 50 K y 8.5 K. El sistema se evacua mediante una bomba rotatoria que alcanza una presión de hasta $5 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ que se mide con un sensor de vacío Pirani. La muestra se monta en una pieza de cobre que se enfría en contacto con la segunda etapa de enfriamiento; un termómetro de diodo de silicio está en contacto con el porta muestras con un controlador de temperatura *Lake Shore 331*. Un cable de nicrom enrollado funciona como calentador también controlado por el equipo *Lake Shore 331*, cuya configuración permite controlar la temperatura entre 10 K y 325 K con una precisión experimental de 100 mK. Los cables micro coaxiales se utilizan para medir con bajo ruido, conectados en una configuración con bucles abiertos de protección. En el exterior del criostato se encuentra un electroimán Oxford refrigerado por agua que se controla por una fuente de alimentación Kepko, con un de campo magnético aplicable de $\pm 4200 \text{ Oe}$. La inducción magnética se mide con un medidor de luz *Magnet-Physik* con un sensor Hall transversal.

En esta tesis, se realiza la caracterización magnetoeléctrica de las muestras mediante la medida de la resistencia variando el campo magnético. En general, la resistencia se suele medir empleando multímetros. En este caso, en ocasiones se trabaja en condiciones de baja señal y, por tanto, se utiliza un nanovoltímetro, que es un voltímetro de elevada sensibilidad que permite la detección de señales tan pequeñas como un nanovoltio. Otra de las consideraciones a

tener en cuenta con baja señal son las interferencias electrostáticas que pueden producir importantes errores en la detección de la señal. Para minimizar los errores que producen dichos campos se recurre al apantallamiento electrostático del montaje experimental, que se realiza mediante el empleo de cables microcoaxiales que minimizan el ruido electromagnético. Esto se consigue haciendo que por el interior del coaxial circula la misma señal que por la malla y aislando eléctricamente el equipo de medida del exterior conectando la carcasa metálica del dispositivo de medida a tierra.

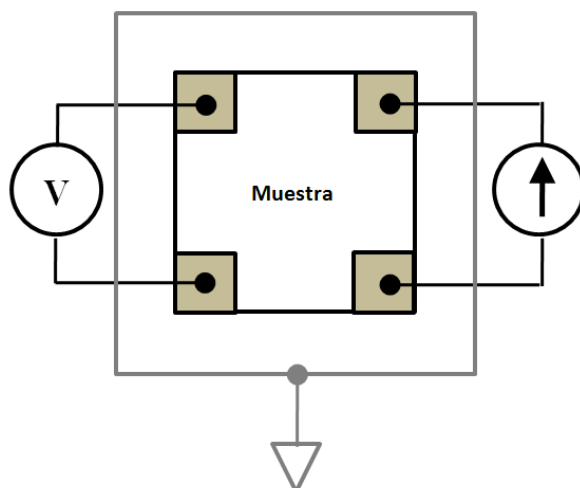


Figura 2.29: Representación esquemática del método cuatro puntas que se emplea en las medidas de las películas delgadas y los dispositivos planares.

3 Paredes de dominio en nanohilos de LSMO

3.1. Introducción

3.1.1. Nanohilos de óxidos y espintrónica

Desde el descubrimiento de la magnetorresistencia gigante (*GMR*) en 1988 [112, 113], la espintrónica es objeto de una intensa investigación. Los dispositivos tecnológicos basados en el espín del electrón y su manipulación poseen ventajas respecto a los tradicionales basados solamente en la carga, incluyendo menor consumo, mayor rapidez de procesamiento, no volatilidad, escalabilidad, etc [114]. Sin embargo, existen obstáculos a la hora de desarrollar esta tecnología basada en el espín. En primer lugar, muchos materiales ferromagnéticos no son buenos candidatos para aplicaciones en dispositivos que funcionen a temperatura ambiente, ya que no exhiben un fuerte magnetismo a esta temperatura. Un ejemplo de ello es el *GaAs* dopado con *Mn*, el cual tiene una temperatura de Curie de 190 K [115]. Como se describe en el capítulo 1, los óxidos de metales de transición tienen gran variedad de propiedades funcionales que van desde aislantes, semiconductores, metales hasta superconductores. Sus propiedades magnéticas oscilan entre el diamagnetismo, el paramagnetismo, el ferromagnetismo y el antiferromagnetismo y el *LSMO* es uno de los mejores ejemplos de metales ferromagnéticos a 300 K con una $T_{\text{Curie}} = 360$ K.

La necesidad de disminuir el tamaño en muchas áreas de la tecnología actual hace que los sistemas a escala nanométrica cobren cada vez más importancia. Por otra parte, los avances en técnicas de deposición, procesos de litografía y herramientas de caracterización en combinación con el desarrollo de nuevas teorías y simulaciones, hacen posible la elaboración de nuevos dispositivos nanométricos que optimizan las propiedades de sus materiales *bulk*. Por tanto, los sistemas a nanoescala no son simplemente la versión en miniatura del material masivo, sino que llevan consigo nuevos fenómenos emergentes por efecto del tamaño reducido, como son el confinamiento cuántico y el efecto de proximidad [116]. La variedad actual de nanoestructuras, nanohilos, nanotubos, nanopilares y nanopartículas representan la rapidez con la que se está expandiendo este área de investigación, la cual traspasa las barreras entre la física, la química, la biología, la ingeniería y la ciencia de materiales.

Para poder explorar en profundidad las propiedades del *LSMO* a escala reducida, es necesario determinar, cuáles de estas propiedades se conservan al reducir el tamaño. En estructuras planas con forma de nanohilos, de anchura igual o inferior a 65 nanómetros fabricados mediante litografía por haz de electrones, las propiedades de transporte se conservan con respecto a las del material masivo. Por tanto, nanohilos de *LSMO* con anchuras en torno a los 100 - 200 nm y longitudes de decenas de micras ofrecen una ruta hacia nanodispositivos para transporte con polarización de espín del 100 %, en los que las paredes de dominio (*DW*) se pueden manipular o anclar para aplicaciones magnéticas, electrónicas y espintrónicas [117].

3.1.2. Energía de canje

Para entender de manera sencilla el concepto de energía de canje (*exchange*) se estudia como ejemplo la molécula de hidrógeno. El hamiltoniano de este sistema se puede expresar como

$$H\Psi = -\frac{\hbar^2}{2m}(\vec{\nabla}_1^2 + \vec{\nabla}_2^2)\Psi + V(r_1, r_2)\Psi = E\Psi \quad (3.1)$$

Por otra parte, según el principio de exclusión de Pauli, la función de onda total del sistema debe ser antisimétrica, o lo que es lo mismo, para que la función de onda total tenga asimetría la parte espacial $\varphi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ y la parte de espín $\chi(1, 2)$ deben cumplir:

$$\Psi(q_1, q_2) = \varphi(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\chi(1, 2) \quad (3.2)$$

$$\Psi(q_2, q_1) = -\Psi(q_1, q_2) \quad (3.3)$$

El estado fundamental del sistema puede ser singlete (antisimétrico, $S = 0$) o triplete (simétrico, $S = 1$) dependiendo del valor de los autovalores más pequeños asociados E_s y E_t . Para el caso de un sólido de N átomos, la diferencia de energías en el estado fundamental se representa

$$E_s - E_t = \frac{\langle \Psi_s | H | \Psi_s \rangle}{\langle \Psi_s | \Psi_s \rangle} - \frac{\langle \Psi_t | H | \Psi_t \rangle}{\langle \Psi_t | \Psi_t \rangle} \quad (3.4)$$

por tanto

$$E_s - E_t = 2J = 2 \int \varphi_1^*(r_1) \varphi_2^*(r_2) \frac{e^2}{|r_2 - r_1|} \varphi_1(r_2) \varphi_2(r_1) dr_1 dr_2 \quad (3.5)$$

donde J es la integral de canje o intercambio.

3.1.3. Paredes de dominio en materiales ferromagnéticos

Para poder explicar la estructura de dominios de un material ferromagnético se puede considerar que éste está magnetizado en saturación a lo largo de uno de sus ejes fáciles de imanación. En este caso, los bordes del ferromagnético generan un campo de desmagnetización que corresponde al campo del dipolo magnético \vec{H}_d y la energía magnetostática es (Fig. 3.1):

$$E_d = \vec{H}_d \cdot \vec{M} \quad (3.6)$$

Entonces, para minimizar la energía, el material se rompe en dominios magnéticos. Estos dominios no se alinean necesariamente con las fronteras de grano, muchos dominios pueden existir dentro de un grano más grande y varios granos más pequeños pueden pertenecer al mismo dominio magnético.

La formación de dominios magnéticos se dispone de manera que la magnetización neta es cero en ausencia de campo magnético externo. Sin embargo, al aplicar un campo magnético a la estructura multidominio anterior, se puede conseguir la saturación magnética a través del movimiento de paredes de dominio. El coste energético de este fenómeno es más bajo que la rotación de la magnetización, la cual conlleva un alto coste de energía de anisotropía.

Las paredes de dominio son los límites entre regiones o dominios en los cuales todos los espines se alinean en la misma dirección, por lo que en la pared, los espines o dipolos magnéticos tienen que reorientarse. La reorientación de los espines sucede a lo largo del espesor de la pared y hay que tener en cuenta la posición del espín y el número de celdas unidad que este tarda en reorientarse, ya que no lo hace de forma súbita, sino gradualmente. Para el caso de un par de espines que giren en la pared, estos pueden tener dos orientaciones posibles, por lo que existen cuatro combinaciones posibles: $\uparrow\uparrow$, $\uparrow\downarrow$, $\downarrow\uparrow$, $\downarrow\downarrow$. Sin embargo los niveles de energía de dos átomos cercanos se desdoblan debido a que $E_s \neq E_t$ y esto hace que aparezca una separación de energías proporcional a la

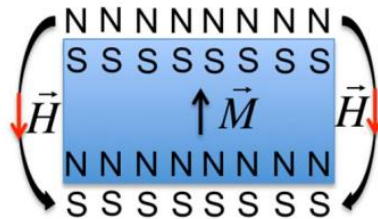


Figura 3.1: Representación esquemática de un ferromagnético magnéticamente saturado a lo largo de un eje fácil. \vec{H} es el campo de desmagnetización [118].

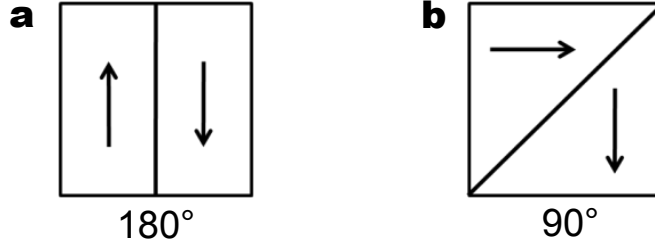


Figura 3.2: (a) Pared de dominio de 180° con energía de intercambio máxima. (b) Pared de 90° donde la energía de intercambio es cero.

integral de canje. La energía de canje de los dos espines depende, por tanto, de dicha integral y del ángulo que formen entre ellos:

$$E_{ex} = -2J\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 = -2JS^2 \cos\theta \quad (3.7)$$

donde J puede tomar valores positivos o negativos y S_1 y S_2 son los momentos angulares de espín. Cabe destacar que orientar dos espines en posición antiparalela tiene un coste muy alto de energía de intercambio. Por tanto, la energía es máxima para paredes de 180° y es cero para paredes de 90° (Fig. 3.2).

Las DW se pueden clasificar en función del plano de rotación de la imanación. Si los espines rotan en el plano de la pared se denomina pared de Block y por el contrario, si los espines rotan en el plano perpendicular a la pared se denomina pared de Néel. Como consecuencia, la anchura de las paredes es medible y depende del número de celdas unidad N que abarca. Si se considera una pared de Block de 180° con N celdas unidad de anchura, el ángulo entre espines vecinos es $\theta = \pi/N$ y la energía de intercambio del par de espines se escribe:

$$\Delta E_{ex} = E_{ex} - E_{ex}^{\theta=0} = -2JS^2 \cos\theta + 2JS^2 \approx 2JS^2 \frac{\theta^2}{2} = JS^2 \frac{\pi^2}{N^2} \quad (3.8)$$

por tanto, la energía de intercambio total es la suma de la energía de intercambio entre cada par de espines sobre N celdas unidad:

$$\Delta E_{ex}^{total} = NJS^2 \frac{\pi^2}{N^2} = JS^2 \frac{\pi^2}{N} \quad (3.9)$$

Si a es la constante de red, la energía de intercambio por unidad de área de la pared de Block de 180° es:

$$\sigma_{BW}^{ex} = \frac{\Delta E_{ex}^{total}}{a^2} = JS^2 \frac{\pi^2}{a^2 N} \quad (3.10)$$

Si N es muy grande, la expresión 3.10 tiende a 0. Esto indica que una pared de espesor infinito es energéticamente favorable, lo que significa que no hay presencia de dominios magnéticos y los espines se orientan aleatoriamente. En el caso de los ferromagnéticos, esta situación no es posible ya que hay que tener en cuenta que la energía de anisotropía se incrementa cuando los espines no están orientados en la dirección del eje fácil de imanación. Por tanto, el espesor de la pared se determina por el balance entre la energía de intercambio y la energía de anisotropía magnética. Si la energía de anisotropía uniaxial es:

$$E_a \approx K_u \sin^2 \theta \quad (3.11)$$

donde θ es el ángulo que forman el espín y el eje fácil y K_u es la constante de anisotropía. Asumiendo que en un dominio los espines se orientan a lo largo del eje fácil y en el dominio vecino se orientan en la dirección opuesta (pared de 180°), se puede calcular la energía de anisotropía total de una pared de N celdas unidad. Para este cálculo se tiene en cuenta $\theta = \pi/N$.

$$E_a^{total} = \sum_{i=1}^N K_u \sin^2 \theta_i \approx \frac{1}{d\theta} K_u \int_0^\pi \sin^2 \theta d\theta = \frac{1}{\pi/N} K_u \frac{1}{2} \pi = \frac{N K_u}{2} \quad (3.12)$$

Si la constante de anisotropía es por unidad de volumen, la densidad de energía de anisotropía total por unidad de área de la pared de Block se escribe:

$$\sigma_a^{total} = \frac{N K_u}{2} \frac{a^3}{a^2} = \frac{N K_u a}{2} \quad (3.13)$$

Sumando las dos contribuciones, energía de intercambio y energía de anisotropía magnética, se obtiene que la densidad de energía por unidad de área de la pared de Block es:

$$\sigma_{BW} = \sigma_{BW}^{ex} + \sigma_{BW}^a = JS^2 \frac{\pi^2}{a^2 N} + \frac{N K_u a}{2} \quad (3.14)$$

Para obtener el espesor de la pared es necesario encontrar el número de celdas unidad que minimiza la densidad de energía en la pared:

$$\frac{d\sigma_{BW}}{dN} = \frac{JS^2 \pi^2}{N^2 a^2} + \frac{K_u a}{2} \quad (3.15)$$

$$N = \pi S \sqrt{\frac{2J}{K_u a^3}} \quad (3.16)$$

El espesor δ de la pared es el número de celdas unidad N por la constante de red a , por tanto

$$\delta = Na = \pi S \sqrt{\frac{2J}{K_u a}} \quad (3.17)$$

En el caso de que la muestra fuese más pequeña que el espesor de la DW , consistiría en un monodominio magnético. Para la manganita $\delta_{\text{LSMO}} = 120$ nm.

3.1.4. Curva de imanación en ferromagnéticos

Los campos magnéticos necesarios para saturar magnéticamente dominios individuales en materiales ferromagnéticos son pequeños, por lo que se puede asumir que a campo cero los dominios están completamente magnetizados pero la magnetización neta de la muestra es cero. Cuando se aplica un campo magnético externo, los dominios que se encuentran orientados en la dirección del campo, empiezan a aumentar de tamaño a expensas de otros dominios. Esto se consigue gracias al movimiento de las paredes de dominio, el cual es un proceso con un coste bajo de energía. Si el campo magnético es suficientemente grande, puede llegar a superar en magnitud a la energía de anisotropía y entonces, la magnetización de los dominios se reorienta en la dirección del campo aplicado. Si la energía de anisotropía es alta, es más difícil mover las paredes de dominio así como cambiar la dirección de la imanación en los dominios, resultado en un campo coercitivo alto. En consecuencia, en términos de energía, es más costoso magnetizar el material a saturación y, por lo tanto, también lo es desmagnetizarlo de nuevo. El campo coercitivo puede aumentar como consecuencia del anclaje de las paredes de dominio. Defectos y/o impurezas impiden el movimiento de paredes y, por lo tanto, contribuyen a la coercitividad, lo cual implica un área extensa en el ciclo de histéresis (Fig. 3.3). El área de un ciclo de histéresis es la energía que se disipa durante el proceso de magnetización - desmagnetización - magnetización inversa.

Los materiales magnéticos, en general, se pueden clasificar en materiales magnéticos blandos y duros. Dependiendo al grupo que pertenezcan, su ciclo de histéresis magnética presenta algunas diferencias. Los materiales magnéticamente blandos son fáciles de magnetizar y desmagnetizar, por lo que se

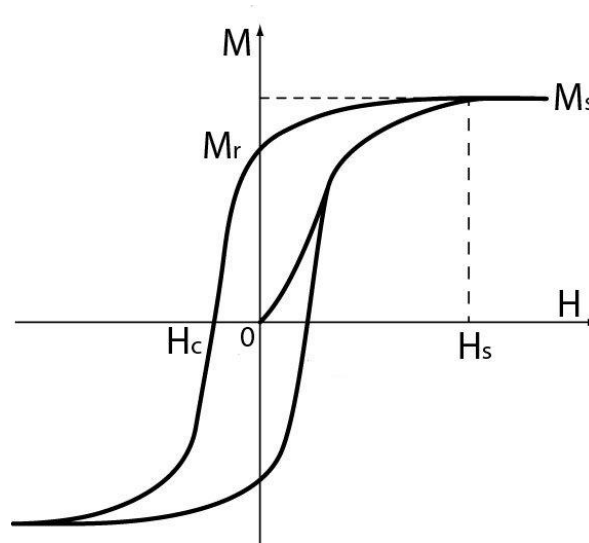


Figura 3.3: Ciclo de histéresis ferromagnético. De 0 a M_s se representa la curva de primera imanación.

emplean en aplicaciones en las que la dirección de la imanación cambia constantemente. Ejemplos de ello son los dispositivos que operan en modo AC como transformadores, generadores y motores. Por el contrario, los materiales magnéticamente duros son difíciles de magnetizar y desmagnetizar, por tanto se usan para almacenamiento de información en discos duros.

3.2. Caracterización de la fabricación de nanohilos

En este apartado se presenta la caracterización de la fabricación de los nanohilos de manganita $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ sobre sustratos de SrTiO_3 (100) descrita en detalle en el capítulo 2. La preparación de las muestras se realiza a partir de películas delgadas epitaxiales de *LSMO* de aproximadamente 20 nm de espesor que se crecen mediante pulverización catódica sobre sustratos de *STO* en la Sala Limpia del *CAI* de técnicas físicas de la Universidad Complutense de Madrid (*UCM*).

3.2.1. Caracterización estructural: difracción de rayos X

Todas las películas delgadas de *LSMO* se caracterizan estructuralmente mediante difracción de rayos X. En la Fig. 3.4-a se muestra el patrón de difracción $\theta - 2\theta$ (*XRD*), de una película delgada modelo de *LSMO*. En la gráfica se observan las reflexiones correspondientes con la familia de planos (001) del *LSMO* para ángulos ligeramente mayores a los del sustrato de *STO*. Este espectro *XRD* indica el crecimiento epitaxial de la capa de *LSMO*, y la existencia de

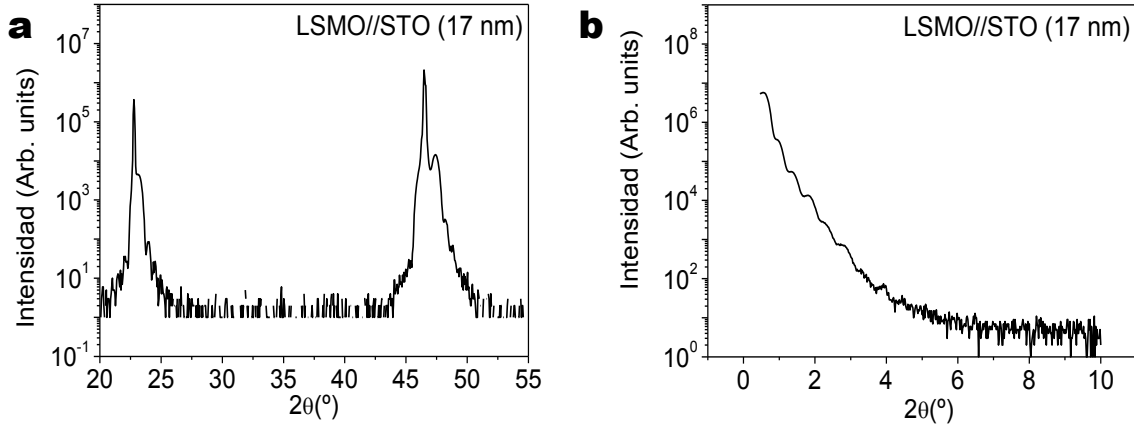


Figura 3.4: (a) Reflexiones de Bragg correspondientes con la familia de planos (001) del *LSMO*. (b) Espectro *XRR* de la misma muestra que en (a) cuyo espesor es 17nm.

oscilaciones de espesor finito muestran la alta calidad cristalina de la película delgada.

Para obtener una medida del espesor de la película delgada de *LSMO* se utiliza la medida de ángulo bajo o reflectividad (*XRR*), que se representa en la Fig. 3.4-b. Se observan oscilaciones de espesor finito que se originan en las reflexiones que se producen en la superficie de la película y en la interfase de la película-sustrato, las cuales son muy sensibles a la rugosidad en dichas superficies [119]. Debido a que el cambio entre el índice de refracción aire-película es mayor que el índice de refracción película-sustrato el amortiguamiento es más sensible a la rugosidad superficial de la película. En la figura Fig. 3.4-b se puede observar el espectro *XRR* de la misma película de *LSMO*, cuyo espesor es de 17 nm.

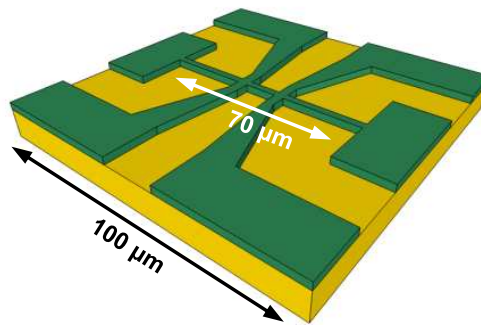


Figura 3.5: Representación esquemática del nanodispositivo de *LSMO* (en verde) que se compone del nanohilo, con una longitud de 70 μm y los seis contactos para las medidas eléctricas.

3.2.2. Litografía y caracterización morfológica

Una vez que se tiene la película delgada de *LSMO* se procede a la fabricación de la nanoestructura según el patrón que se muestra en la Fig. 3.5. El diseño y la transferencia del patrón se realiza mediante litografía por haz de electrones y procesos de comido o ataque húmedo como se describe en la sec. 2.3.1.1. Una vez se finaliza la fabricación de los hilos es necesario comprobar que el proceso es satisfactorio y no daña las propiedades del material. En primer lugar, se caracteriza la morfología del dispositivo por medio de la técnica *AFM* descrita en la sec. 2.2.2. El objetivo es obtener imágenes de la topografía para comprobar que el hilo no esté dañado, sea continuo, no sea rugoso y finalmente para obtener sus dimensiones. La serie de imágenes SEM de la Fig. 3.6-a-c muestran el detalle de la resina *ma-N2403* después del proceso de revelado sobre una película delgada de *LSMO*. Se observa como el patrón del nanohilo se ha trasladado satisfactoriamente a la resina, con una resolución de hasta 100 nm (*inset c*). En la Fig. 3.7 se observa la topografía y perfil (*AFM*) de muestras ya litografiadas y atacadas, donde se puede ver el nanohilo y unos contactos o *pads* de *LSMO* sobre los que posteriormente se litografiaran contactos de *Ag* con una segunda litografía óptica alineada, como se puede ver en el panel (d) de la Fig. 3.6. En las imágenes de *AFM* se puede observar continuidad y poca rugosidad de los nanohilos y de los perfiles se pueden obtener sus dimensiones.

3.2.3. Caracterización eléctrica de nanohilos de *LSMO*

Para obtener información sobre las propiedades eléctricas y magnéticas de las manganitas se realizan medidas de transporte en función de la temperatura y el campo magnético. En la Fig. 3.8 se observa que el comportamiento eléctrico de películas de *LSMO* de este trabajo coincide con las reportadas para el material *bulk* [120]. Este comportamiento es observado por Tokura y colaboradores en 1996 [20]: para $T < T_{Curie}$ el sistema presenta una fase metálica ferromagnética mientras que para $T > T_{Curie}$ la fase es aislante paramagnética. Esto es consecuencia de que el *LSMO* es un óxido fuertemente correlacionado, y su mecanismo de conducción se basa en el doble canje, por tanto, el transporte electrónico se caracteriza por la transición metal-aislante determinada por su temperatura de Curie, en *bulk* 360 K.

El siguiente paso es caracterizar el dispositivo eléctricamente para comprobar que las propiedades de la manganita *LSMO* se conservan tras el proceso de fabricación ya que al ser un óxido correlacionado sus propiedades son extremadamente sensibles a daños que se puedan producir por el procesado, especialmente en el comido. Para ello se hace una segunda litografía óptica y se evaporan contactos de Plata como se muestra en el panel (d) de la Fig. 3.6. La Fig. 3.8 presenta la curva de resistividad en función de la temperatura de una

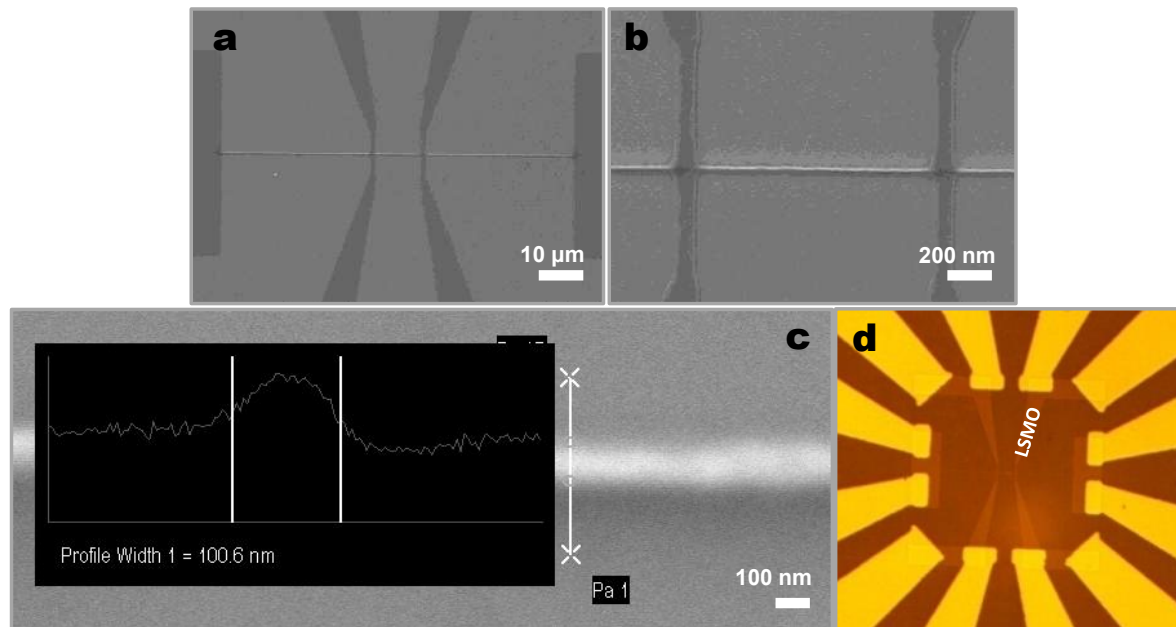


Figura 3.6: (a) y (b) Imágenes SEM de la resina negativa revelada para generar el dispositivo. (c) detalle de la imagen SEM y su correspondiente perfil. (d) Imagen de microscopía óptica de un nanodispositivo que se compone de un nanohilo y zonas de contacto de *LSMO*. En la imagen se puede distinguir el patrón de *LSMO* y los contactos metálicos de plata que se definen posteriormente mediante litografía óptica correctamente alineada.

película delgada y la misma curva de un nanohilo. Al realizar estas medidas se aplica un campo magnético en la dirección del hilo suficientemente alto como para alinear los momentos magnéticos de forma paralela a la dirección del hilo durante todo el ciclo de medida. De esta forma se compensan los defectos que anclan la magnetización del material y, por tanto, hay menos contribuciones a la magnetoresistencia que provengan del desorden. Como se muestra en la Fig. 3.8 ambas gráficas muestran un valor similar de resistividad en función de la temperatura, por lo que se puede afirmar que el proceso de fabricación del nanohilo no modifica las propiedades eléctricas de la manganita.

3.2.4. Magnetotransporte en nanohilos de LSMO

3.2.4.1. Caracterización de las paredes de domino

En primer lugar se realiza el estudio de un hilo de *LSMO* de 180 nm de anchura combinando varias técnicas, para caracterizar de la manera más completa posible su magnetotransporte. El *inset* superior de la Fig. 3.9 es una imagen *AFM* de la parte central del hilo, que muestra los contactos verticales y el nanohilo horizontal. A la derecha se muestra el perfil del hilo, que reporta una

3.2 Caracterización de la fabricación de nanohilos

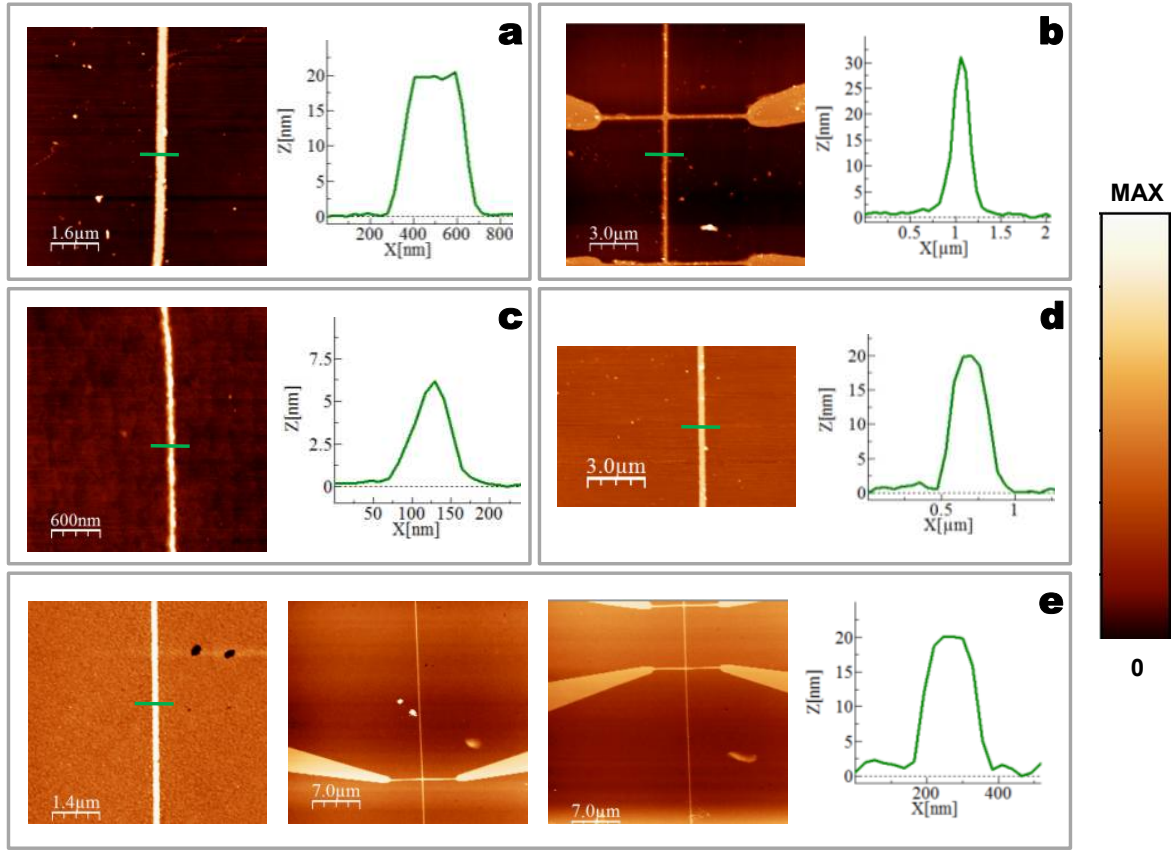


Figura 3.7: Imágenes de *AFM* de la topografía de muestras listografiadas y atacadas con sus correspondientes perfiles.

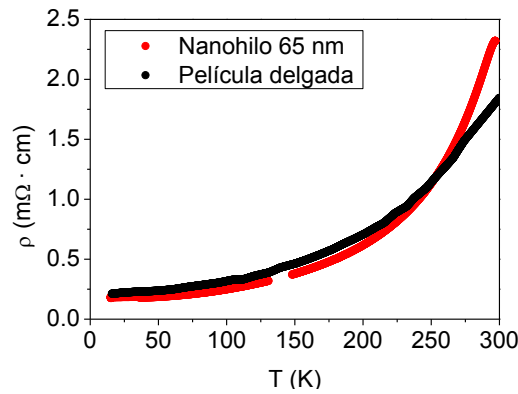


Figura 3.8: Comparación de las curvas *RT* de un nanohilo de *LSMO* de 65 nm de grosor (roja) y una película delgada de 20 nm de espesor del mismo material.

altura de 15 nm y un grosor de 180 nm. Se toma este último valor como la anchura del hilo, teniendo en cuenta que suele ser un valor ligeramente sobre estimado debido a la convolución de la punta con el nanohilo. El panel principal de la Fig. 3.9 muestra la dependencia de la resistencia con la temperatura del nanohilo. Se observa la disminución típica de la resistencia por debajo de 300 K de la fase ferromagnética del *LSMO*. Los altos valores de la resistencia son consecuencia de la geometría reducida del nanohilo.

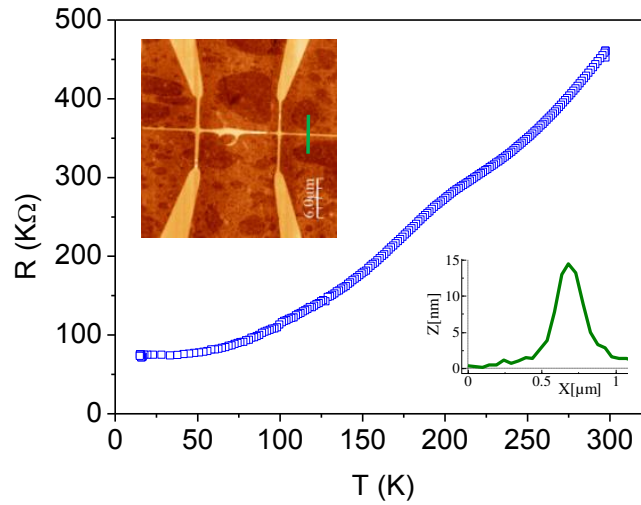


Figura 3.9: Resistencia vs temperatura de un nanohilo *LSMO*. La figura superior es una imagen de *AFM* del centro del nanohilo (en horizontal), y cuyo perfil a través del hilo muestra una altura de 15 nm y una anchura de 180 nm. Los contactos verticales tienen una anchura mayor que la del nanohilo, de 500 nm.

La Fig. 3.10 muestra la dependencia de la resistencia (medida a 4 puntas) con el campo magnético del nanohilo de 180 nm de ancho, a bajas temperaturas (20 - 50 K), donde el *LSMO* tiene una polarización de espín del 100 %. Para valores de campo H altos las curvas muestran el comportamiento típico de *AMR*, pero en campos bajos se observa un comportamiento sorprendente. Viniendo del estado de saturación, al invertir el campo magnético, el nanohilo presenta un *switching* o conmutación a un estado de mayor resistencia a campos bajos (90 - 110 Oe), que se repite al invertir el signo del campo. El estado de alta resistencia se mantiene hasta que se alcanza un campo superior (300 - 380 Oe), en el que el nanohilo recupera el estado de resistencia en saturación, mostrando un comportamiento similar a la conmutación de la resistencia en uniones túnel con electrodos ferromagnéticos. El estado de alta resistencia es robusto y se puede observar a temperaturas de hasta 80 K. A temperaturas más altas, el estado de alta resistencia desaparece y sólo existe la contribución de *AMR* convencional, lo que indica que la polarización de espín del 100 % del *LSMO* puede jugar un papel en el origen del estado de alta resistencia. El hecho de que ocurra un *switching* de la resistencia en el rango de baja temperatura, muy similar al observado en las uniones de túneles magnéticos, es inesperado e interesante, ya que es un nanohilo *LSMO* continuo, y no hay ningún otro material aislante en el camino de los electrones.

Al realizar estas medidas se aplica una corriente de 30 μA que corresponde a una densidad de corriente de 10^6 A/cm^2 , dos órdenes de magnitud menor que la densidad de corriente necesaria para mover una pared de dominio, 10^8 A/cm^2 [1]. Por lo tanto, se puede considerar que no se está modificando el

estado magnético del dispositivo con la inyección de corriente.

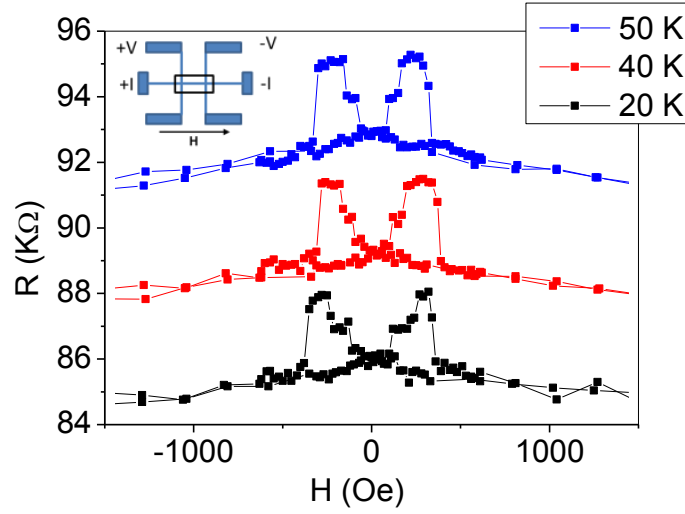


Figura 3.10: Resistencia vs campo magnético de la parte central del nanohilo de *LSMO* de 180 nm a 20, 40 y 50 K. La configuración de medida de cuatro puntas se muestra en el esquema superior izquierdo ($I = 30 \mu A$). Se observa una conmutación de la resistencia similar a la de una unión túnel magnética cuando se cicla el campo magnético.

Para investigar el origen del *switching* y del estado de alta resistencia en el nanohilo, se realiza un estudio detallado del estado magnético del mismo nanohilo con microscopía fotoelectrónica (*PEEM*) en el sincrotrón *BESSY* en colaboración con el Dr. Sergio Valencia. El detalle de las imágenes de *XMCD* que se obtienen para diferentes orientaciones de la muestra, el haz sincrotrón y el campo magnético se presentan en el apéndice 1 (sec. 3.6). En la Fig. 3.11 se presenta una selección de estas imágenes *XMCD* junto con la curva de transporte para analizar el estado magnético del nanohilo y el origen del aumento de la resistencia. La primera fila de imágenes de *PEEM*, (Fig. 3.11-b-e) muestra los resultados con el campo magnético en la dirección del hilo y ambos formando un ángulo de 45° con el haz sincrotrón. La señal *XMCD* es proporcional a la proyección de la magnetización de la muestra en la dirección del haz, y como el nanohilo y el contacto forman un ángulo de 90° entre sí, en el caso de incidencia a 45° ambas proyecciones son iguales y el *XMCD* resultante es igual de sensible a la magnetización a lo largo del nanohilo y a lo largo del contacto. La imagen (c) corresponde al hilo saturado en campo negativo $H = -300$ Oe, y aparece con la correspondiente componente negativa de *XMCD* roja, según el código de colores de la Fig. 3.11. Las flechas rojas de la cruz debajo de la imagen (c) ilustran la orientación de la imanación en el nanohilo y el contacto. En esta situación, en el panel (a) se observa una resistencia de $93 K\Omega$. En el panel (d) se ve cómo al invertir el campo hasta el valor $H = 275$ Oe se genera un dominio con proyección de la imanación paralela al haz, que aparece con *XMCD* azul. De esta manera se genera una pared de dominio en el nanohilo

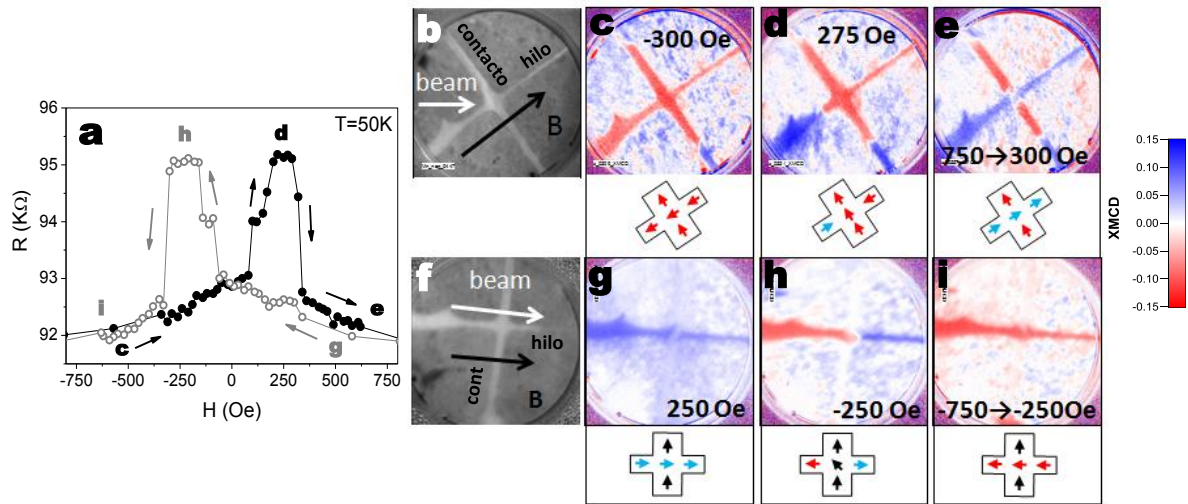


Figura 3.11: (a) Magnetorresistencia de la parte central del nanohilo de 180 nm a 50 K medida en una configuración de cuatro puntas. Los puntos negros muestran el barrido del campo magnético ascendente y los puntos grises muestran el barrido descendente. (b) Imagen *XAS* a 53 K obtenida en el PEEM que ilustra el ángulo de 45° entre el haz y tanto el cable como el campo magnético. Imágenes superiores (c), (d) y (e): barrido ascendente siguiendo la secuencia de medición de la curva R - H , después de aplicar $H = -750$ Oe, con el código de color *XMCD* correspondiente indicado a la derecha. (d) y (e) muestran el detalle de la inversión de magnetización en el hilo aumentando H . Las cruces inferiores de (c), (d) y (e) son una representación esquemática de la orientación de magnetización en la cruz que forman los contactos y el nanohilo correspondiente a la imagen *XMCD* superior. (f-i) Mismo análisis *XAS* y *XMCD* con el haz paralelo al nanohilo y el campo magnético. En esta orientación la magnetización en los contactos es perpendicular al haz y el *XMCD* es nulo. (h, i) Detalle de la inversión de magnetización disminuyendo H . La serie completa de imágenes se encuentra en el apéndice 1 (sec. 3.6).

muy cercana a la cruz con el contacto, que está en el camino de la corriente al medir transporte. De acuerdo con lo anterior, la curva de transporte muestra un aumento de la resistencia en estos valores de campo magnético. Se sigue aumentando el campo para conseguir saturación positiva. Como las medidas con campo magnético aplicado están limitadas por el *set up* del *PEEM* a 300 Oe, se incrementa el campo hasta 750 Oe y se mide a 300 Oe para obtener la imagen del panel (e). En este caso se observa todo el nanohilo en contraste azul, confirmando la aniquilación de la pared de dominio generada anteriormente. La resistencia para este campo vuelve a tomar los valores de saturación que tenía antes del aumento.

El estudio del comportamiento magnético del nanohilo y la cruz en el *PEEM* se completa analizando la serie de medidas *XMCD* de la Fig. 3.11-f-i. En el panel (f) se observa la imagen de *XAS* del nanohilo (en horizontal), orientado esta vez en la misma dirección del haz sincrotrón y el campo magnético externo H . En esta disposición los contactos forman un ángulo de 90° con el haz, con proyección nula y tienen, por tanto, *XMCD* cero, color blanco. La secuencia

del campo magnético es la misma: en la imagen (g) se observa el *XMCD* del nanohilo saturado en campo positivo a $H = 250$ Oe, el nanohilo aparece consecuentemente en azul, y esta situación corresponde al valor de resistencia en torno a $93 \text{ K}\Omega$ de la imagen (a) en los puntos grises. Se disminuye el campo magnético hasta $H = -250$ Oe, y se tiene la imagen *XMCD* de (h), en la que se ha generado un dominio con imanación antiparalela al haz, y aparece en *XMCD* rojo. La frontera entre el dominio paralelo azul y el antiparalelo rojo está otra vez en la cruz, indicando la importancia de la intersección de los contactos con el nanohilo en la generación de la pared de dominio. En el esquema inferior de la figura (h) se indica con flechas las orientaciones de la imanación, y cómo en el contacto la anisotropía de forma hace que la imanación esté a lo largo del contacto vertical, y por tanto muestre un *XMCD* nulo (blanco). Esta situación con la pared de dominio en la cruz se corresponde en la curva $R(H)$ con el valor aumentado de la resistencia, aproximadamente $95 \text{ K}\Omega$. Para saturar el nanohilo se disminuye el campo hasta -750 Oe y se vuelve a medir en $H = -250$ Oe, observando en la imagen magnética todo el nanohilo con imanación en la dirección antiparalela al haz, y por tanto con color *XMCD* rojo. En este estado saturado se suprime la pared de dominio y en la gráfica $R(H)$ se observa la resistencia base del nanohilo, $93 \text{ K}\Omega$.

Considerando las imágenes magnéticas de *XMCD* de la Fig. 3.22 del apéndice 1 (sec. 3.6), se ve la generación de paredes de dominio de 180° dentro del nanohilo en los mismos campos magnéticos en los cuales se observa el cambio o conmutación de la resistencia en las medidas de magnetotransporte, y exactamente en la región espacial entre los contactos verticales que se caracteriza en las medidas de transporte de cuatro contactos. El origen del estado de alta resistencia aparece como la resistencia de la pared de dominio en el nanohilo al generar un dominio con proyección antiparalela en la intersección del hilo y el contacto al invertir el campo magnético, y tiene un valor de $2.4 \text{ K}\Omega$. Aumentando más el campo magnético, la pared de dominio se propaga hasta el final del hilo y desaparece, recuperando el valor de baja resistencia.

La cruz que define la intersección del hilo de 180 nm con los contactos de 500 nm es la región donde se observa la aparición de la pared de dominio. Para investigar la dinámica de la magnetización en esta región tan específica del hilo se realizan extensas medidas de *MFM* a 50 K en la misma muestra, con la colaboración de la Dra. Carmen Munuera del Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid (*CSIC*). La serie completa de medidas se muestra en el apéndice 2 (sec. 3.7), y en la Fig. 3.12 se presentan las imágenes seleccionadas para analizar la imanación en la cruz al ciclar el campo magnético. La Fig. 3.12-a es la imagen de topografía que se obtiene en el *MFM*, en la que se marcan las orientaciones del hilo, los contactos y el campo magnético aplicado a lo largo del nanohilo. El panel (b) muestra la imagen *MFM* de los polos magnéticos en la región de la cruz del nanohilo y los contactos en saturación positiva, $H=1000$ Oe, con un

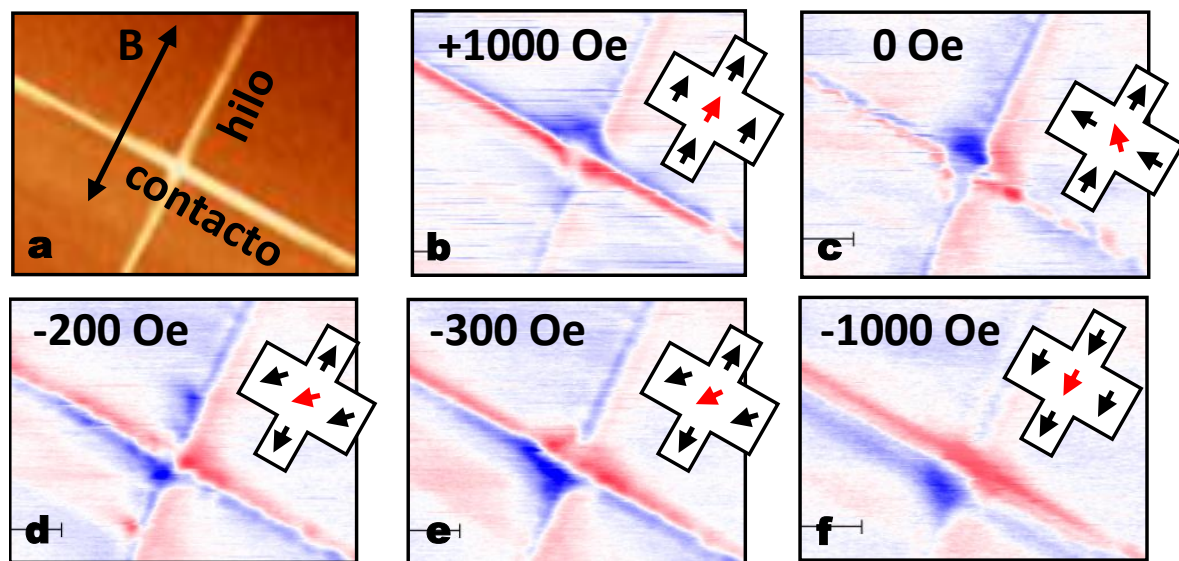


Figura 3.12: Estudio *MFM* a 50 K del mismo nanohilo de 180 nm medido en el *PEEM*. (a) Imagen *AFM* que muestra la orientación del campo magnético a lo largo del nanohilo y los contactos perpendiculares. (b-f) Imágenes *MFM* del nanohilo para diferentes campos magnéticos aplicados siguiendo medio ciclo de histéresis descendente. Los valores de H se seleccionan para mostrar la rotación de la magnetización en la cruz. Se incluye un esquema al lado de cada imagen *MFM* para ilustrar la orientación de la magnetización en el nanohilo, los contactos y en la intersección. (b) y (f) corresponden a saturación positiva y negativa respectivamente. La serie completa de imágenes *MFM* se encuentra en el apéndice 2 (sec. 3.7).

código de colores en rojo y azul. En el lateral se representa esquemáticamente la orientación de la imanación a lo largo de la dirección positiva del campo en el nanohilo y en el contacto. El panel (c) muestra la imagen de *MFM* de la región de la cruz en remanencia, $H = 0$ Oe. Se observa que los polos magnéticos han desaparecido en el contacto, por lo tanto su imanación está en la dirección del contacto, como se indica en el esquema. El nanohilo tampoco presenta polos magnéticos, manteniendo su imanación en la dirección y sentido de la imanación de saturación. Sin embargo, en la cruz sí se aprecian diferencias con (b), con una pequeña rotación de la imanación en la región central hacia la izquierda. El panel (d) es la imagen *MFM* correspondiente a la inversión del campo magnético con un valor de $H = -200$ Oe. En esta imagen se aprecia como la imanación en la cruz se ha girado, de forma que ahora los polos positivos azules están a la izquierda de la cruz, mientras que antes estaban a la derecha. Aparecen además zonas azules en el nanohilo próximas a la cruz, lo que indica la presencia de una pared de dominio que se genera por la rotación de la imanación en la intersección, conforme se representa en el esquema de la cruz. En el panel (e) se ha disminuido el campo hasta los $H = -300$ Oe, y la imagen *MFM* muestra que la rotación de la imanación en la cruz ha terminado, no se observan polos en el nanohilo y las paredes de dominio han desaparecido. El esquema de la orientación de la imanación se muestra al lado de la imagen de

*MF*M. Finalmente, el panel (f) es la imagen de *MF*M de saturación negativa, $H = -1000$ Oe, en la que tanto el nanohilo como los contactos están orientados en la dirección y sentido negativos marcados por el campo magnético. El análisis de *MF*M explica el papel fundamental que tiene la región de intersección del nanohilo con los contactos en la generación de la pared de dominio. En esta región compiten la anisotropía magnetocristalina, cuyo eje fácil es la dirección (110) y la anisotropía de forma del nanohilo y del contacto, posibilitando la rotación de la imanación. De esta forma, la cruz es la zona en la que se genera preferentemente la inversión de la imanación, dando lugar a las paredes de dominio.

La competición entre las distintas energías involucradas en la creación de paredes de dominio en la cruz del nanohilo de *LSMO* puede ser simulada teóricamente. Para entender más en profundidad la respuesta de los nanohilos frente a un campo magnético se reproducen la morfología y condiciones de medida del dispositivo mediante simulaciones micromagnéticas. Estas simulaciones se realizan en colaboración con la Dra. Sandra Ruiz y el Dr. Lucas Pérez del Departamento de Física de Materiales de la *UCM*. Para ello se utiliza el software *MuMax*³ [121] y se toma como referencia las dimensiones del dispositivo real, simulando un nanohilo de 150 nm de anchura y un contacto de 300 nm. Se emplea un tamaño de celda de 4 nm tanto en x como en y y se definen (110) y (-110) como direcciones fáciles de anisotropía magnetocristalina.

Las simulaciones consisten en ciclos de histéresis partiendo de saturación y variando el campo magnético de -1500 Oe hasta 1500 Oe con pasos de 30 Oe. El campo se aplica en la dirección del hilo y se añade una pequeña contribución de campo en otra dirección (de un 5 %) para simular posibles desviaciones del campo en las medidas experimentales. Los parámetros que se utilizan son: constante de canje $3 \cdot 10^{12}$ J/m, imanación de saturación $400 \cdot 10^3$ A/m y anisotropía $-9 \cdot 10^3$ J/m³. El campo se aplica paralelo a la dirección del hilo. Los resultados se muestran en la Fig. 3.13 en una disposición parecida a un ciclo de histéresis y siguiendo el sentido del campo magnético indicado en las flechas. En este caso, el código de color es también rojo-azul donde azul corresponde a imanación positiva y rojo a negativa. Tanto en el semiciclo positivo como en el negativo, al invertir el campo magnético la imanación del nanohilo se empieza a invertir en la región de la cruz, y se genera una pared de dominio de 180° como consecuencia de que la anisotropía de forma del nanohilo es más robusta por su menor anchura que la del contacto, y no permite que la imanación rote en el hilo pero sí en la cruz. Esta pared de dominio de 180° se propaga por el nanohilo al seguir ciclando el campo magnético. La simulación reproduce exactamente la dinámica de inversión de la imanación de las medidas magnéticas de *XMCD* y *MF*M. El proceso de inversión de magnetización es controlado por la generación de una pared de dominio en la cruz, que se propaga hasta el final del nanohilo, aniquilándose cuando el hilo de *LSMO* se satura. Los valo-

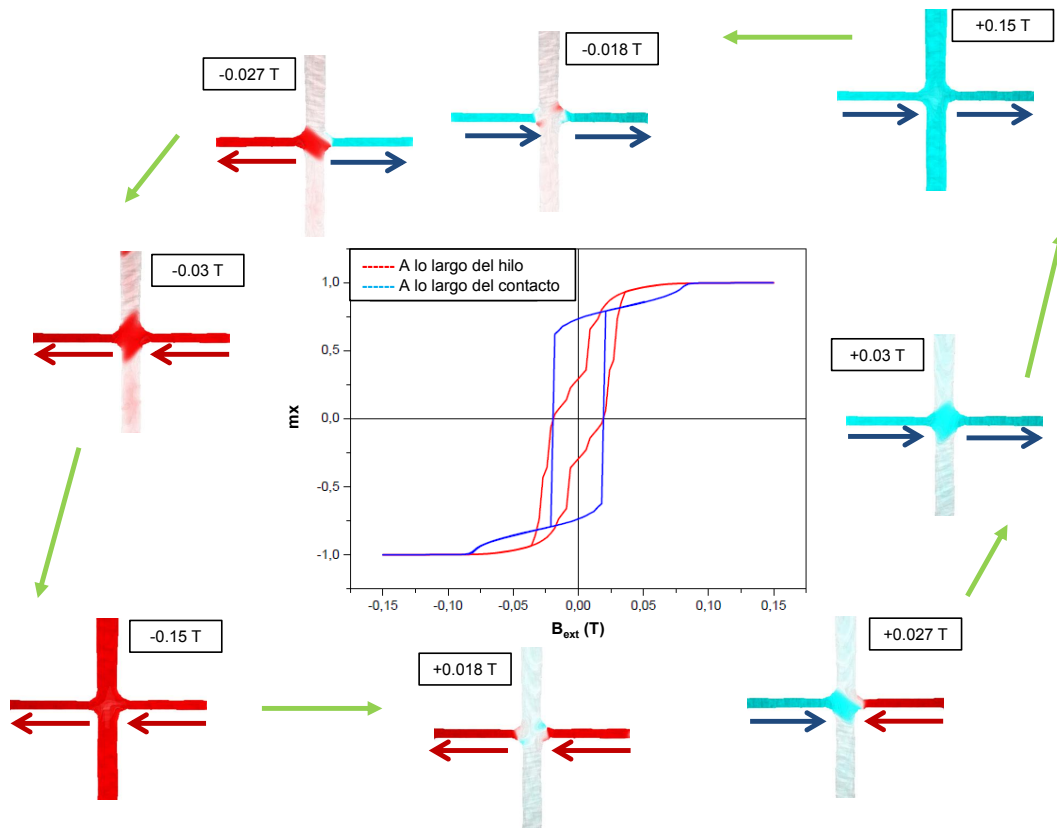


Figura 3.13: Simulaciones micromagnéticas del estado de la imanación en diferentes estados del ciclo de histéresis de un nanohilo de *LSMO* de 150 nm y el contacto de 300 nm, recorrido en el sentido que marcan las flechas. La imagen central representa los ciclos de histéresis del hilo (rojo) y del contacto (azul).

res de los campos magnéticos para la nucleación y aniquilación de la pared de dominio que se obtienen en la simulación son muy similares a los observados experimentalmente. En el centro de la Fig. 3.13 se muestra el ciclo de histéresis simulado en el nanohilo (rojo), con campos coercitivos de alrededor de 200 Oe. En la simulación la pared de dominio una vez generada no es estable y desaparece en cuanto se cambia el campo magnético. En el mundo real, en la intersección del contacto con el nanohilo hay defectos y centros de anclaje que retienen durante un pequeño intervalo de campo magnético la pared de dominio en torno a la cruz, obteniéndose la conmutación de la resistencia que se observa en las curvas de magnetorresistencia RH.

3.3. Diseño de paredes de dominio en nanohilos

Una vez se ha entendido la generación de paredes de dominio en la cruz del nanohilo de *LSMO* y la dinámica de la inversión de la imanación, se puede optimizar dicha generación de *DW* de 180° en diferentes nanohilos. Por una parte

se puede buscar la máxima resistencia y estabilidad de la pared disminuyendo la anchura del nanohilo hasta el límite de la resolución de la litografía, en este caso 65 nm. Por otro lado, se puede buscar anclar esta pared de dominio muy resistiva en nanohilos en los que en el ciclo de medida de la RH no presenta el aumento de resistencia correspondiente. A continuación se presentan los resultados para nanohilos correspondientes a 65 y 200 nm de anchura.

3.3.1. Nanohilo de 65 nm

Se presenta la caracterización del transporte magnetoelectrico para un nanohilo de 65 nm de anchura, cuya morfología se observa en la Fig. 3.14. En este nanohilo la anchura es menor que la longitud experimental encontrada para la pared de dominio, y por tanto se espera aumentar el efecto de la conmutación de la resistencia al ciclar el campo. Se observa también en la figura que al estar en el límite de nanofabricación del sistema de litografía, los bordes de la nanoestructura son más rugosos.

Para estudiar el transporte de los nanohilos se utiliza la configuración de cuatro contactos que permite corregir la resistencia entre la manganita y el contacto de plata. En algunos casos no todos los contactos están operativos, y se utiliza una configuración de tres o incluso de dos puntas. Comparando los valores de ambas medidas en la misma muestra, la resistencia de contacto de la plata con el *LSMO* es del orden de cientos de Ohmios, al menos dos órdenes de magnitud inferior a las resistencias de los nanohilos que se estudian y, por lo tanto, la resistencia de contacto no afecta a las conclusiones que se extraen

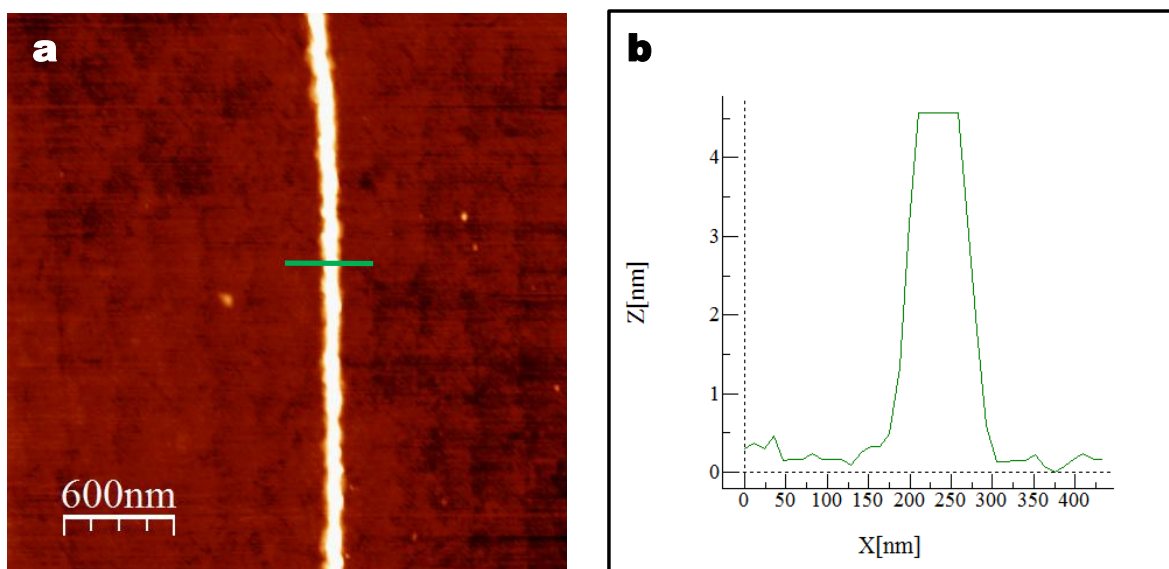


Figura 3.14: Imagen de topografía de AFM de un nanohilo de 65 nm (izquierda) con su correspondiente perfil (derecha).

de las medidas de dos y de tres puntas.

Se presenta en la figura Fig. 3.15-a la curva RH del nanohilo a 50 K con el campo aplicado a lo largo de la dirección del hilo. Los puntos negros son el barrido aumentando el campo magnético y los grises corresponden al barrido disminuyendo el campo. El nanohilo tiene una resistencia base de 92 K Ω , y se observa la conmutación a un estado de alta resistencia, en torno a 98-100 K Ω al invertir el signo del campo magnético y generar, por tanto, una pared de dominio en el nanohilo, como se ve en el apartado anterior. Esto sucede para valores de campo magnético de 250 Oe, similares pero ligeramente mayores que los que se observan en el primer nanohilo, indicando el mismo mecanismo de generación de la pared de dominio. Sin embargo, la vuelta al estado de resistencia normal se consigue a valores de campo mucho mayores en este hilo de 65 nm de anchura, por encima de 1500 Oe. Entre estos dos valores tan diferentes de campo se observa además una dependencia de la resistencia del nanohilo que disminuye linealmente al aumentar el campo magnético. Esta disminución lineal, es similar a la que se obtiene en un fenómeno de rotación de la imanación, y está de acuerdo con el proceso de generación de una pared de dominio en las inmediaciones de la cruz, y la posterior rotación de la imanación en la cruz para propagar y finalmente aniquilar la *DW*. Se confirma que el incremento de la resistencia por la generación de la pared de dominio en el nanohilo se ha aumentado al reducir la anchura del hilo, y también que la rugosidad en la nanofabricación de este hilo tan delgado aumenta el anclaje de la pared de dominio que ahora es estable en un rango de campos magnéticos extremadamente grande, en el orden de 1500 Oe.

En la Fig. 3.15-b se presenta la variación de la resistencia al ciclar el campo magnético a una corriente de 1 μ A y a temperaturas constantes en el rango 50-

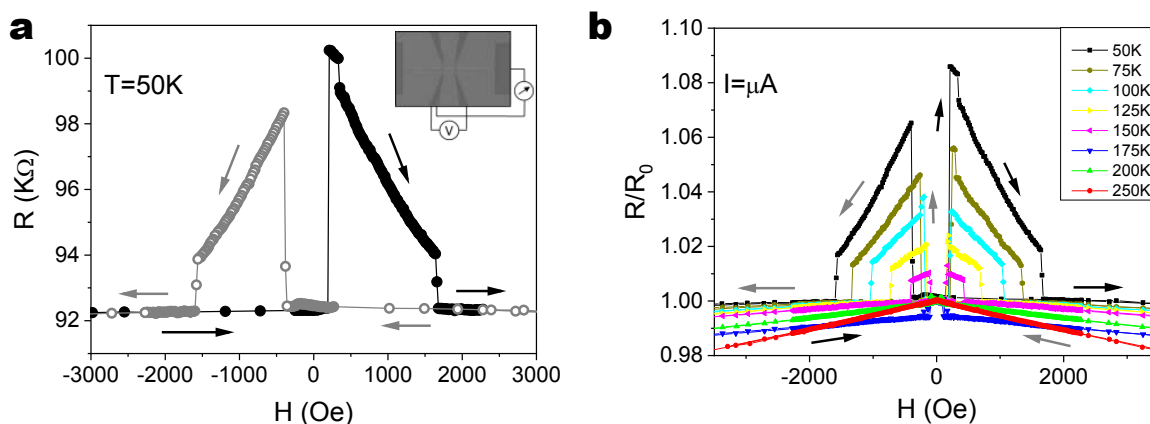


Figura 3.15: (a) Magnetoresistencia de un nanohilo de 65 nm de ancho, en la configuración de medida de tres puntas que se especifica en el *inset*, a 50 K y con una corriente de 1 μ A. El barrido ascendente del campo magnético se presenta en puntos negros y el descendente en puntos grises. (b) Magnetoresistencia normalizada a diferentes temperaturas medidas a 1 μ A.

250 K, normalizada a la resistencia a campo cero para mejor visualización. Se observa que el estado de alta resistencia generado por la pared de dominio de 180° disminuye al aumentar la temperatura, y deja de observarse por encima de 150 K. A estas temperaturas la polarización de spin del 100 % se ha perdido en el *LSMO*, y la magnetorresistencia está dominada por la contribución *AMR* (curva roja de 250 K), indicando una vez más la importancia del comportamiento medio metal en esta conmutación de la resistencia. En la figura se observa que así como el primer campo de generación de la *DW* se mantiene estable en la parte de la RH con campos positivos, el segundo campo de aniquilación de la pared disminuye fuertemente con la temperatura, pasando de 1660 Oe a 50 K a 430 Oe a 150 K. Se observa, por tanto, que el rango de campos magnéticos en los que la pared es estable disminuye con la energía térmica.

3.3.2. Nanohilo de 200 nm

En este experimento se pretende estabilizar la pared de dominio de 180° en un nanohilo que no presenta la conmutación de la resistencia observada en los hilos anteriores. En la Fig. 3.16 se presenta una imagen de *AFM* con el perfil correspondiente. Al medir las características $R(H)$ haciendo un ciclo completo en el campo magnético, la resistencia permanece plana salvo unos pequeños aumentos de $250\ \Omega$ para los campos ± 45 Oe, lo que supone una pequeña magnetorresistencia del 0.5 %. Este aumento tan pequeño no puede deberse a una frontera de dominio de 180° , pero la existencia de una variación de la resistencia indica que se puede estar generando una *DW* de ángulo cercano a 90° al invertir la imanación del hilo, y por lo tanto con una resistencia baja.

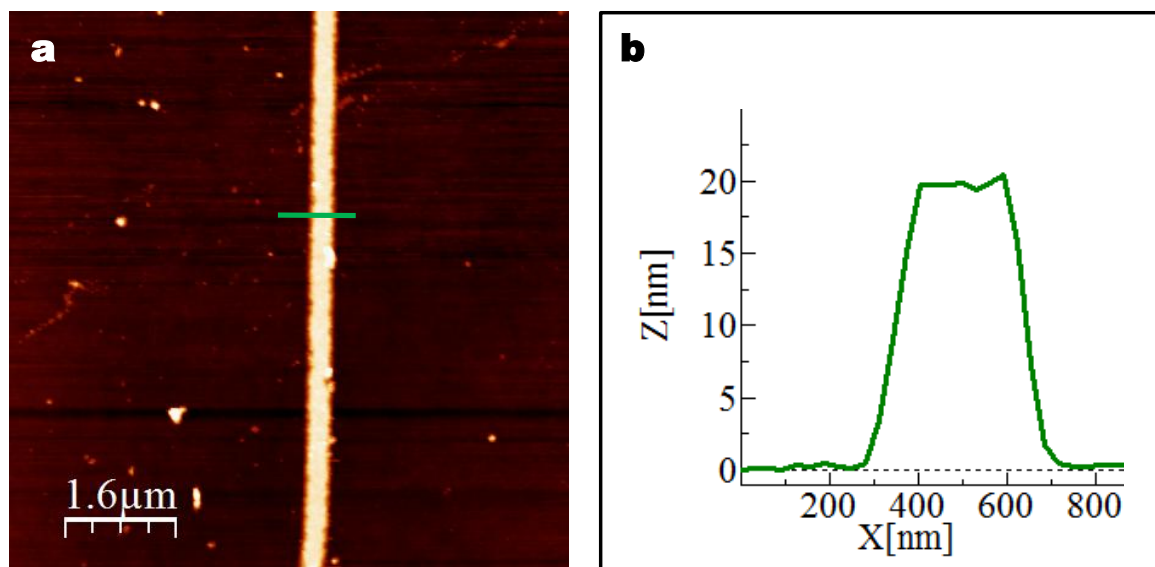


Figura 3.16: Imagen de topografía de AFM de un nanohilo de 200 nm (izquierda) con su correspondiente perfil (derecha).

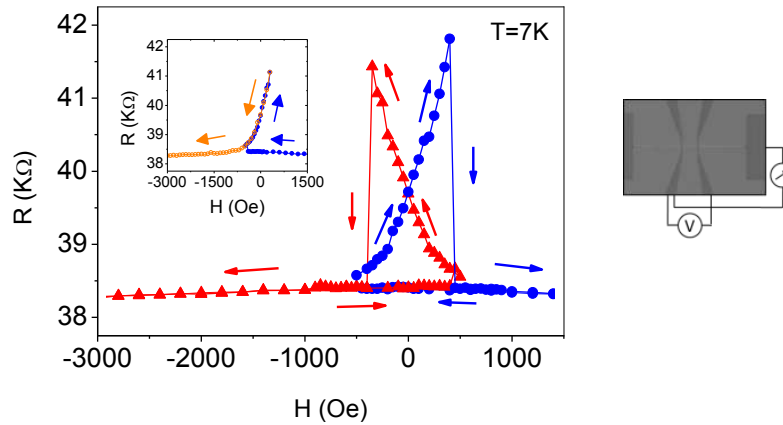


Figura 3.17: Ciclos menores positivos y negativos de un hilo de 200 nm de ancho a 7 K y 10 μ A. La curva roja muestra un barrido ascendente hasta el primer cambio de resistencia a 40 Oe y de nuevo a saturación negativa, mostrando un aumento del 8% en la magnetorresistencia y el retorno a los valores previos de resistencia a -40 Oe. La curva azul muestra el barrido descendente hasta -50 Oe y de regreso a la saturación positiva mostrando el retorno al estado inicial a 40 Oe. El *inset* muestra la magnetorresistencia de un ciclo menor incompleto, en azul el barrido descendente desde la saturación positiva hasta -40 Oe, en ese valor se invierte la variación del campo, aumentando y deteniéndose antes de la segunda conmutación de la resistencia. En naranja, la disminución de la magnetorresistencia después de disminuir el campo magnético desde 40 Oe, antes del segundo cambio de resistencia. Se observa que los datos siguen exactamente la dependencia anterior de la resistencia con H. En la imagen de la derecha se muestra el esquema de medida a 3 puntas en la cruz del nanohilo con los contactos.

Teniendo en cuenta que después de la generación de la pared de dominio se ha observado la rotación de la imanación en la cruz, se puede variar la historia magnética de la muestra para rotar en sentido contrario y buscar la pared de dominio de 180°.

En la Fig. 3.17 se presenta la magnetorresistencia de la cruz nanohilo - contactos perpendiculares, variando el campo magnético siguiendo un ciclo menor. Las medidas se realizan a tres puntas como muestra el esquema de la imagen de la derecha. La curva roja muestra un barrido ascendente empezando en campo negativo (saturación, 38.5 K Ω) hasta el pequeño cambio de resistencia a 40 Oe cuando se genera la pared de dominio. En este punto se disminuye el campo magnético hasta saturación negativa. La resistencia muestra un acusado aumento al disminuir H, que supone un 8% en la magnetorresistencia. Al pasar por el campo coercitivo en -40 Oe la resistencia cae abruptamente al valor previo de resistencia de saturación. La curva azul muestra la variación de la resistencia con la misma secuencia de campo magnético pero empezando, esta vez, en saturación positiva. Se disminuye el campo hasta -50 Oe y después se regresa a saturación positiva. La magnetorresistencia se comporta de manera idéntica, aumentando después del primer campo coercitivo negativo y

cayendo a los valores previos del estado saturado positivo a 40 Oe. Con esta secuencia de campo magnético parecida a un ciclo menor desde saturación es posible generar una pared de dominio con una enorme magnetorresistencia del 8 %. Aunque la imagen magnética microscópica de la cruz no se ha medido todavía, el comportamiento cualitativo sigue lo observado en los nanohilos anteriores, y se puede asignar el aumento de la resistencia a la rotación de la imanación en la cruz. Al invertir el campo magnético se aumenta el ángulo de la pared de dominio hacia 180° , y se consigue el correspondiente aumento de la resistencia. La estabilización de la DW y el proceso de rotación se mantienen al aumentar la temperatura hasta 150 K, de acuerdo con lo observado para el nanohilo de 65 nm. Se puede comprobar que la rotación de la imanación es robusta y reversible haciendo una segunda medida basada en la secuencia anterior, pero invirtiendo el campo magnético una segunda vez para evitar el cambio al estado de saturación. En el *inset* de la figura Fig. 3.17 se muestra la magnetorresistencia de este “ciclo menor incompleto”. En azul se presenta el primer barrido de campo H descendente desde la saturación positiva hasta -40 Oe, y luego el segundo barrido aumentando el campo hasta 30 Oe, antes de la segunda conmutación de la resistencia. En naranja se representan los datos de resistencia disminuyendo el campo magnético desde 30 Oe hasta saturación negativa. Se observa que la disminución de la resistencia después de disminuir el campo magnético desde los 30 Oe sigue exactamente la dependencia de los puntos azules, cuando se ha aumentado el campo desde -40 Oe.

3.4. Discusión de resultados

Tanto el análisis del transporte con campo magnético del hilo de 180 nm con la completa caracterización magnética, como las simulaciones micromagnéticas y las medidas de magnetotransporte en los hilos de 65 y 200 nm, evidencian la nucleación de paredes de dominio de 180° en la cruz del nanohilo. La generación de la DW origina el estado de alta resistencia en la curva RH y la posterior conmutación de la resistencia al estado normal al aniquilar dicha pared, dando como resultado una curva RH similar al caso de una unión túnel magnética.

A continuación se analizan los valores obtenidos para la pared de dominio de 180° y así, compararlos con los valores reportados en muestras similares. El valor de resistencia, $\Delta R = 2400 \Omega$ que se obtiene para el nanohilo de 180 nm, así como el valor de $MR = \frac{R(H) - R(0)}{R(0)}$ $MR = 2.6\%$ es inesperadamente alto para una pared de dominio. La resistencia por unidad de área de la pared es $8.6 \cdot 10^{-12} \Omega m^2$ a 50 K y una corriente de 10 μA , un valor similar pero ligeramente mayor que el reportado previamente por otros autores, $2.5 \cdot 10^{-13} \Omega m^2$ [122,123]. Para los hilos con paredes de dominio optimizadas de 200 y 65 nm se encuentra un valor aún mayor de la magnetorresistencia, del 8

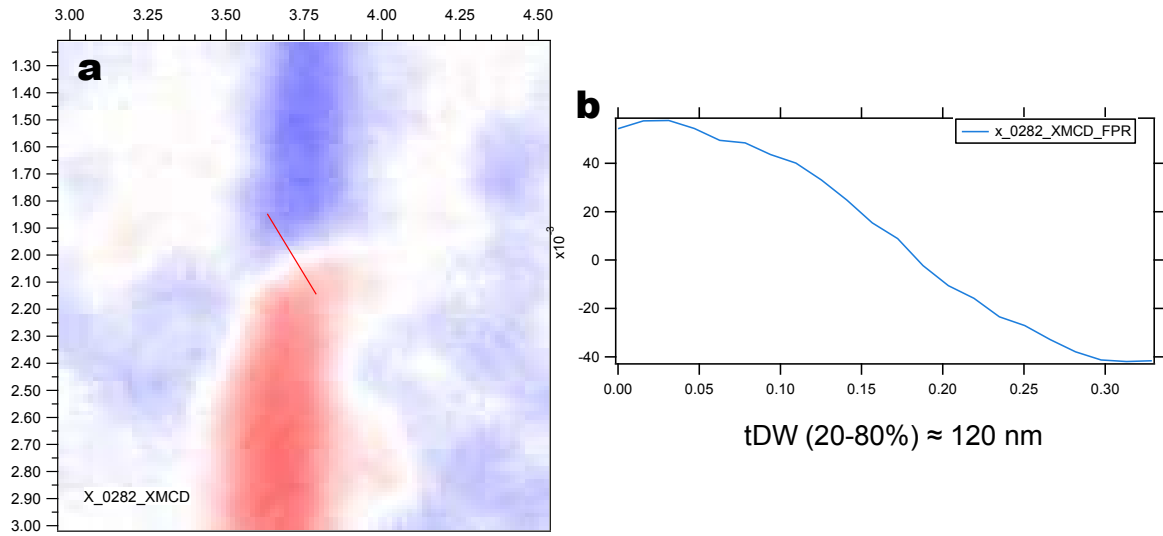


Figura 3.18: Detalle de la imagen *XMCD* de una pared de dominio de 180° y perfil de la magnetización mostrando el grosor de la pared en el nanohilo de *LSMO*.

y 9 % respectivamente.

Otro parámetro de estudio de la *DW* es su anchura, se puede hacer una estimación de la misma con las imágenes obtenidas por PEEM a máximos aumentos. La Fig. 3.18-a presenta una imagen de *XMCD* de la pared de dominio de 180° que se produce al invertir la imanación en el nanohilo. El perfil de la magnetización en la dirección perpendicular a la pared (Fig. 3.18-a) se muestra en el panel b. Se observa un espesor de $t = 120$ nm, definido por el criterio de variación máxima de magnetización del 20 al 80 %. Este valor está de acuerdo con el ancho extraído de las simulaciones micromagnéticas, $t = 80$ nm. Trabajos anteriores reportaron una anchura de paredes de dominio de 180° de $t = 62$ nm en tiras de *LSMO* de 80 nm de altura y tamaño micrométrico ($1 \times 5 \mu\text{m}^2$) [123]. Este valor concuerda bien con el resultado, teniendo en cuenta el mayor tamaño de la estructura del *LSMO*. También se han reportado medidas de pared de domino en una película delgada de 200 nm de *LCMO*, obteniendo un valor de 38 nm [124].

La longitud de 120 nm para una pared de domino de 180° es una restricción muy severa para el doble intercambio responsable del ferromagnetismo y el comportamiento metálico del *LSMO*. Significa que la magnetización tiene que rotar un ángulo de $5-6^\circ$ por celda unidad (0,39 nm), lo que sin duda puede afectar al transporte de carga del *LSMO*. De esta forma la resistencia del nanohilo aumenta cuando se nuclea la *DW* de 180° y disminuye al valor anterior cuando se aniquila. Dado que las manganitas tienen una fuerte tendencia a segregarse en fases, es natural considerar una fase aislante del *LSMO* dentro de la pared. Sin embargo, las medidas de corriente frente a voltaje no muestran evidencia de túnel a través de una fase *LSMO* aislante, y el rango de temperatura de

este comportamiento indica que la polarización de giro del 100 % del hilo está correlacionada con el estado de alta resistencia.

3.5. Conclusiones

En este capítulo se fabrican diferentes nanohilos de *LSMO* para generar y caracterizar paredes de dominio de 180° , que muestran una alta magnetorresistencia y tienen aplicación en tecnologías para electrónica y espintrónica. Las conclusiones más importantes que se encuentran son las siguientes:

Se optimiza una ruta de fabricación de nanodispositivos de *LSMO* basados en un patrón que se compone de un nanohilo y dos contactos verticales de mayor anchura. Se mantienen las propiedades intrínsecas del *LSMO* tras el proceso de fabricación y se consigue un dispositivo operativo con un nanohilo de 65 nm de anchura, en el límite de la resolución del equipo de litografía por haz de electrones.

Se realiza un completo estudio experimental de un nanohilo de 180 nm combinando diferentes técnicas en la misma muestra para caracterizar y entender su comportamiento magnetorresistivo. El transporte eléctrico a 50 K, caracterizado en medidas RH con campo en la dirección del nanohilo, muestra una conmutación a un estado de resistencia elevado, al invertir la imanación ciclando el campo magnético, que supone una magnetorresistencia del 2.6 %. Este estado sobrevive en un pequeño rango de campos magnéticos y desaparece cuando el nanohilo está en saturación magnética. El comportamiento magnético del nanohilo se investiga tanto con imágenes de *XMCD* obtenidas en el *PEEM* como con medidas de *MFM*, realizadas a 50 K. Ambas medidas demuestran que el aumento en la resistencia aparece como consecuencia de generar una pared de dominio de 180° en la cruz que forma la intersección del nanohilo de 180 nm con los contactos perpendiculares de 500 nm. Al invertir el campo magnético la imanación gira en esta región y se nuclea la pared de dominio de 180° . La pared sobrevive y se propaga al continuar con el ciclo de campo magnético y finalmente desaparece cuando el nanohilo se satura y se vuelve monodominio. Simulaciones micromagnéticas, teniendo en cuenta la anisotropía magnetocristalina y la anisotropía de forma del dispositivo, reproducen fielmente el proceso de nucleación y propagación de la pared de dominio de 180° . Por tanto, la pared se crea en la cruz como consecuencia de la competición entre las anisotropías de forma del hilo y el contacto.

Se presenta también el estudio del magnetotransporte de un hilo de anchura mínima, 65 nm. En este hilo se optimiza el efecto del aumento de la resistencia al invertir la imanación, consiguiendo una magnetorresistencia máxima del 9 %. Además se aumenta el segundo campo de conmutación de la resistencia de 200

Oe a 1660 Oe, probablemente efecto de una mayor rugosidad en el nanohilo como consecuencia de estar en el límite del proceso de nanofabricación. En el estado de alta resistencia se produce una disminución de la misma al continuar con el ciclo del campo magnético que se asocia al proceso de rotación de la imanación en la zona de la cruz.

Se analiza un nanohilo de 200 nm el cual presenta una muy baja magnetorresistencia (0.5 %) como se observa la RH siguiendo la secuencia del campo magnético de un ciclo de histéresis. Teniendo en cuenta el proceso de rotación de la imanación en la cruz descubierto con el *MFM*, se ha medido la curva RH siguiendo una secuencia de doble inversión del campo magnético para conseguir una pared de dominio de 180° y maximizar la magnetorresistencia. De esta forma se consigue observar el aumento de la resistencia siguiendo el proceso de rotación de la imanación, que es un proceso robusto y reproducible, y aumenta la magnetorresistencia en más de un orden de magnitud, hasta el 8 %.

La caracterización de la frontera de dominio con *XMCD* a 50 K permite estimar una anchura de la pared de 180° para el *LSMO* de 120 nm, de valor que es comparable con las anchuras reportadas en tiras y películas delgadas de *LSMO*. Asimismo, el producto resistencia por área $RA = 8.6 \cdot 10^{-12} \Omega m^2$ es comparable y ligeramente mayor que los de la literatura.

Entender la generación y estabilización de paredes de dominio de 180° en nanohilos del medio metal *LSMO* utilizando la competición de anisotropías de forma del nanohilo con un contacto más ancho perpendicular a él resulta de enorme interés y abre la puerta al diseño de dispositivos avanzados para su aplicación en espintrónica.

3.6. Apéndice 1: Estudio de imágenes de XMCD en

En este apéndice se presenta la caracterización magnética completa del nanohilo de 150 nm con todas las imágenes *XMCD* obtenidas en el *PEEM* en colaboración con el Dr. Sergio Valencia del sincrotrón *BESSY*. La muestra se mantiene a 50K después de un proceso de enfriamiento sin campo, *ZFC*. Se presentan tres series de medidas, dependiendo del ángulo con el que incide el haz sobre el nanohilo en el plano de la muestra. Como la señal *XMCD* es la proyección de la magnetización en la dirección del haz en el plano de la muestra, y el nanohilo y el contacto forman un ángulo de 90° entre sí, en el caso de incidencia a 45° ambas proyecciones son iguales ($\cos 45^\circ$) y el *XMCD* resultante se observa con la misma intensidad tanto para el nanohilo como para el contacto. Si la incidencia es a 0° sobre el nanohilo, el *XMCD* que resulta para el nanohilo es máximo y mínimo para el contacto (Fig. 3.19), mientras que si la incidencia es a 90° sobre el nanohilo, las imágenes *XMCD* serán únicamente sensibles al magnetismo de los contactos.

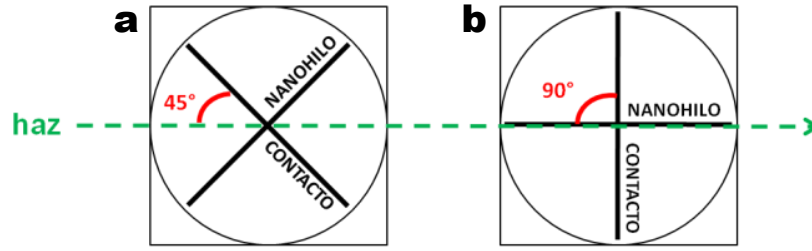


Figura 3.19: Esquema de la incidencia del haz sobre el nanohilo y el contacto. (Izquierda) Incidencia a 45°. (Derecha) Incidencia a 0°.

En la Fig. 3.20 se presenta la serie de imágenes *XMCD* con el haz de rayos X incidiendo a 45° del nanohilo en el plano de la muestra, como muestra Fig. 3.19-a. El campo se aplica en el plano en la dirección del nanohilo, y las medidas se hacen aplicando la secuencia de campo magnético H desde 0 a 300 Oe (sin llegar a saturar), posteriormente se vuelve a 0 para después saturar a -750 Oe, y medir a -300 Oe en saturación. Finalmente se aumenta el campo hasta llegar a saturación positiva a 750 Oe, pero se mide a 300 Oe por la limitación del

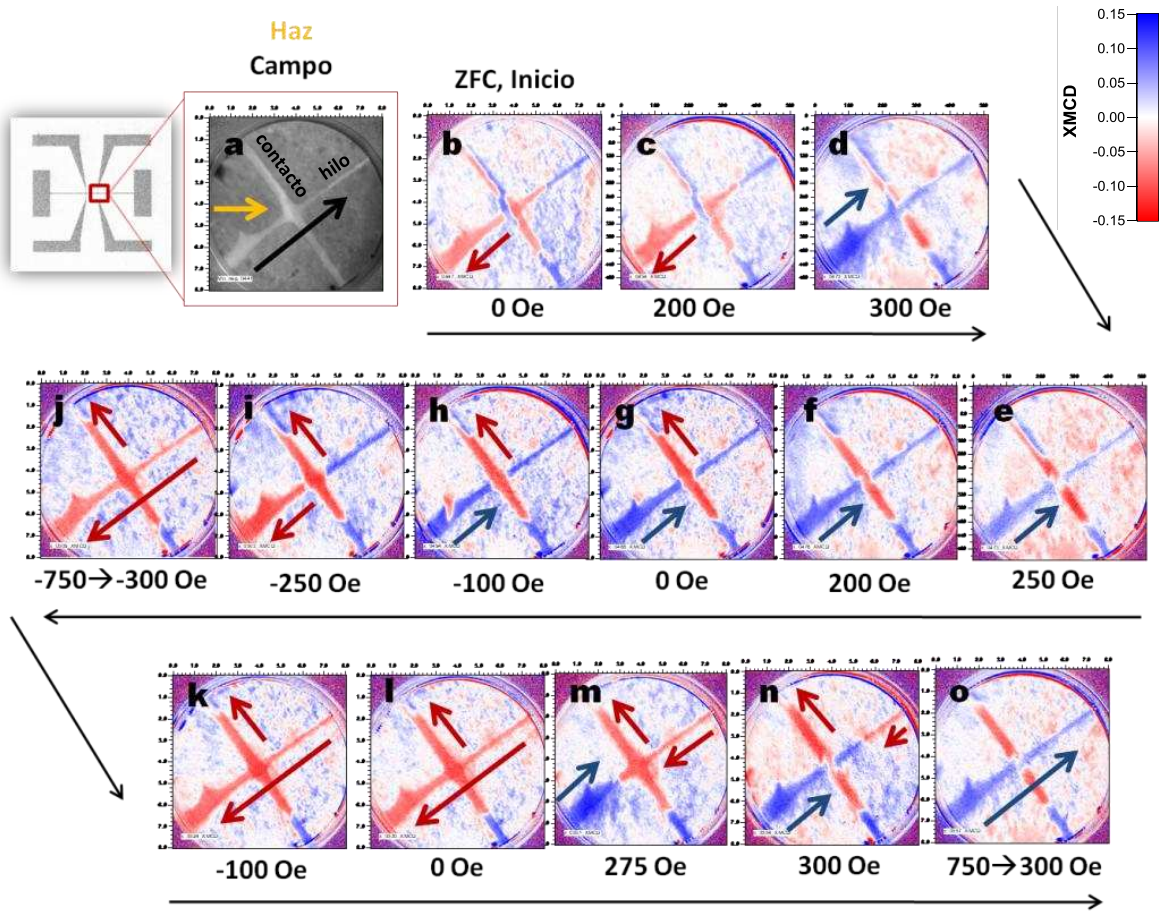


Figura 3.20: *XMCD* de un nanohilo de 150 nm de anchura con haz incidente a 45°. (a) Esquema de las condiciones de incidencia del haz y el campo aplicado. (b-o) Ciclo de campo magnético a 51 K.

montaje experimental. Esta serie de imágenes tiene el código de color *XMCD* especificado en el lateral derecho, azul proyección paralela al haz y rojo perpendicular al haz. Los campos magnéticos se especifican en cada imagen, y la secuencia de medida se indica con flechas.

Las características de cada panel en la Fig. 3.20 son:

Panel b: Se observan los dominios magnéticos que tiene el dispositivo tras *ZFC*, en este caso muestran el dispositivo virgen.

Panel c: Se mantienen los dominios magnéticos iniciales.

Panel d: A 300 Oe la magnetización del hilo se alinea con el campo mientras que la del contacto presenta dominios con magnetización antiparalela. La anisotropía de forma hace que con un pequeño campo magnético se favorezca la magnetización en la dirección del nanohilo. Por el contrario, en el contacto el campo está aplicado en la dirección perpendicular, y la anisotropía de forma dificulta, en este caso, la orientación de la imanación hacia el campo.

Paneles e-g: Se disminuye el campo sin llegar a saturar totalmente el nanohilo en campo positivo. De nuevo, la anisotropía de forma domina la orientación de los momentos magnéticos. Al disminuir el campo, la magnetización en el hilo se mantiene a lo largo del mismo excepto en el centro. A 250 Oe el contraste azul se empieza a debilitar en la cruz debido a la anisotropía de forma del contacto que forma 90° con el nanohilo y provoca una reorientación de la imanación. El contraste blanco en la cruz anticipa que esta región va a ser donde se forme la pared de dominio. A 200 Oe y a campo 0 el contraste rojo se intensifica en el contacto debido otra vez a la anisotropía de forma del contacto que orienta la imanación en su dirección.

Panel i: Al invertir el campo magnético hasta -250 Oe se genera un dominio con imanación invertida en el nanohilo, que aparece en contraste *XMCD* rojo. Este dominio está localizado a un lado de la cruz, pero al otro lado se mantiene la imanación paralela al haz en contraste *XMCD* azul. La imanación en el hilo empieza a invertirse, pero el campo no es suficientemente intenso como para conseguir rotarla completamente y se crea una pared de dominio en la cruz, que es lo suficientemente estable como para poder observarla. Este instante se traduce como un incremento de la resistencia en las curvas RH medidas para la misma muestra.

Panel j: Se disminuye el campo hasta saturación negativa y el contraste rojo de las figuras evidencia la orientación antiparalela de la imanación del nanohilo respecto del haz. Por tanto, la imanación de todo el hilo se encuentra alineada con el campo magnético negativo y la *DW* ha sido aniquilada. En la curva RH esta situación de saturación corresponde a recuperar el valor normal de la magnetorresistencia.

Paneles j,k: Al aumentar el campo desde saturación negativa hasta cero se mantiene la misma situación magnética, con la imanación del nanohilo orientada antiparalela al haz.

Panel m: Al invertir el campo magnético hasta un valor de 250 Oe se crea un dominio con la imanación invertida respecto del de la saturación negativa, que tiene proyección positiva respecto al haz, y que aparece en contraste XMCD azul. Se genera una pared de dominio (azul-rojo) en el nanohilo en un lateral de la cruz con el contacto, que supone el aumento de la resistencia en las curvas de RH medidas para el mismo valor del campo magnético.

Panel n: Al aumentar el campo hasta 300 Oe se propaga la pared de dominio de forma que aumenta el dominio paralelo al campo magnético y disminuye el dominio antiparalelo. Se confirma la supervivencia de la DW en un cierto valor de campo magnético de 250-300 Oe, como se observa en las curvas RH, en las que el estado de alta resistencia es estable y reproducible.

Panel o: Se consigue saturar la muestra aumentando el campo a 750 Oe, pero midiendo a 300 Oe por limitaciones experimentales. Se observa el nanohilo en azul, la pared ha desaparecido y se recupera, por tanto, el estado de resistencia normal en las curvas RH, reproduciendo fielmente el comportamiento magnetorresistivo observado.

En la Fig. 3.21 se presentala serie de medidas XMCD del hilo de 150 nm con el haz de rayos X incidiendo a 0° respecto del nanohilo, como se muestra en la Fig. 3.19-b y en el panel (a) de la Fig. 3.21. En esta orientación solamente hay contraste XMCD a lo largo del hilo y no en la dirección del contacto, que forma un ángulo de 90° con el haz. De forma análoga al ciclo anterior se inician las medidas con un ZFC y se realiza la secuencia de medida: cero - saturación positiva -campo cero - saturación negativa.

Las características de cada panel son las siguientes:

Panel b: En el estado inicial el nanohilo está roto en dominios magnéticos, por lo que se observa un dominio con XMCD negativa en rojo a la izquierda de la imagen y un dominio con XMCD positiva en azul a la derecha. Teniendo en cuenta la anisotropía de forma del nanohilo estas imanaciones están a lo largo de la dirección del hilo, y se observa por tanto una pared de dominio de 180° rojo-azul. Los contactos aparecen en color XMCD blanco, que corresponde a tener una imanación perpendicular al haz. Como se observa en la serie anterior, la anisotropía de forma del contacto hace que la imanación se ponga a lo largo de su dirección y tenga, por tanto, proyección nula en la orientación del haz y el nanohilo.

Panel c: Al aumentar el campo hasta 250 Oe, se mueven las paredes de dominio aumentando el número de dominios que están orientados en la dirección del campo magnético. De esta forma el contraste en el nanohilo es prácticamente

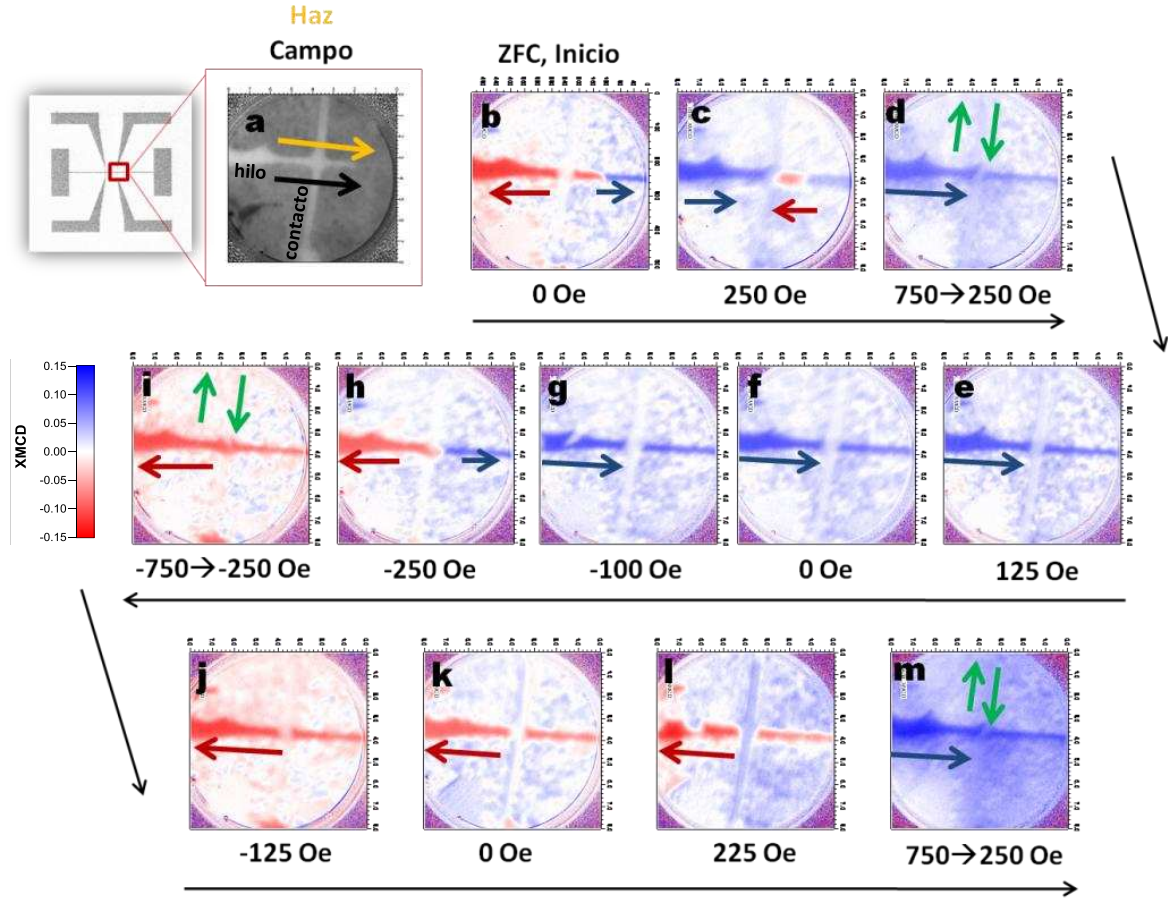


Figura 3.21: XMCD de un nanohilo de 150 nm de anchura con haz incidente a 0° . (a) Esquema de las condiciones de incidencia del haz y el campo aplicado. (b-o) Imágenes XMCD del nanohilo y los contactos con el campo H especificado en cada figura, siguiendo la secuencia que marcan las flechas, a 51 K.

azul exceptuando un pequeño dominio antiparalelo rojo en el lateral de la cruz del nanohilo con el contacto.

Panel d: Se incrementa el campo magnético hasta 750 Oe y se mide el estado magnético a 250 Oe. En esta situación se satura completamente el nanohilo, que toma la dirección del campo y aparece en contraste XMCD azul.

Paneles e-g: A 125 Oe, tras la saturación positiva, la magnetización del nanohilo está completamente alineada con el campo magnético. Aunque se disminuya el campo la situación se mantiene hasta -100 Oe ya que la anisotropía de forma favorece a el anclaje de la imanación y la intensidad del campo no es suficiente para invertirla.

Panel h: Se disminuye el campo hasta -250 Oe y se observa la aparición de un dominio invertido respecto al estado de saturación positiva, que está localizado a un lado de la cruz. Se genera, por tanto, una pared de dominio de 180° en la cruz delimitada por la frontera de los dominios paralelos al haz azules y antiparalelos rojos. En este mismo valor de campo magnético se observa un

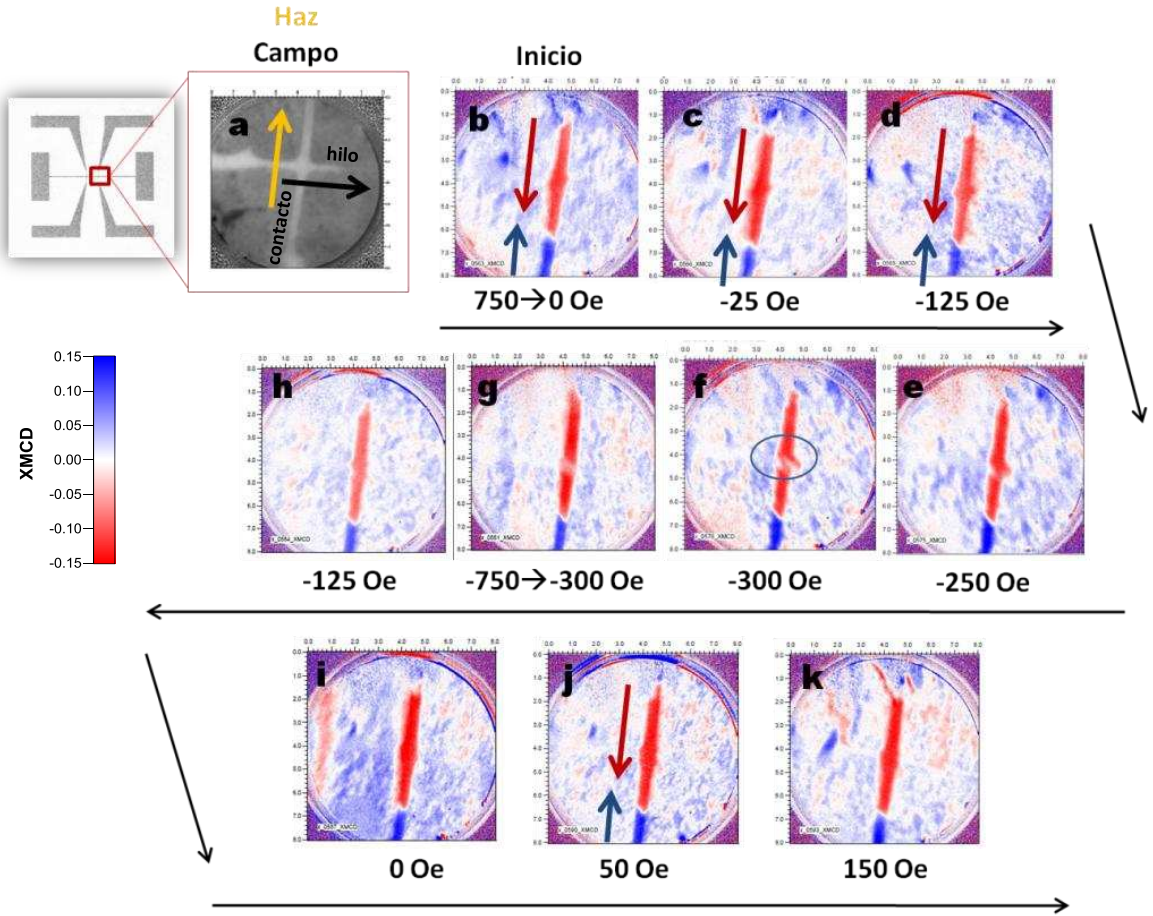


Figura 3.22: XMCD del nanohilo de 150 nm de anchura con haz incidente a 90° a 51 K. El contraste XMCD es mínimo para el nanohilo y máximo para el contacto

aumento de la resistencia en la RH, que se asigna a la generación de esta pared de dominio de 180° en estado de medio metal.

Panel i: Tras saturación negativa, a -750 Oe se mide la imagen XMCD a -300 Oe. El nanohilo aparece en rojo, como corresponde a la imanación antiparalela al haz, siguiendo la dirección del campo magnético. La pared de dominio generada en el campo coercitivo se ha propagado hasta el final del hilo y ha desaparecido, causando la disminución de la resistencia a su valor normal en la curva RH.

Paneles j,k: Al aumentar el campo hasta cero se conserva la estructura magnética del estado saturado negativamente. La imanación está completamente alineada con el campo. Aumentando el campo a -125 Oe y a 0 Oe, se mantiene la orientación negativa de la imanación que permanece anclada por la anisotropía de forma, y también el mismo estado resistivo que en saturación.

Panel l: Al aumentar el campo hasta 275 Oe se mantiene la mayor parte del nanohilo con la imanación orientada en la dirección de saturación negativa, pero se aprecia cómo se modifica en la cruz. La competición entre las anisotropías

de forma del hilo de 180 nm y del contacto de 500 nm hacen de la cruz el punto en el que se generan las paredes de dominio.

Panel m: Si se aumenta el campo hasta 750 Oe para conseguir saturación positiva se completa el ciclo de histéresis. Al medir a 250 Oe se puede observar el estado magnético saturado positivamente, con el hilo en *XMCD* azul, y sin rastro de las fronteras de dominio que se generaron al invertir la imanación.

Para completar la información magnética del nanohilo de 180 nm se hacen medidas magnéticas del contacto, con incidencia a 90° respecto del nanohilo, como se especifica en Fig. 3.22-a. En esta configuración no hay contraste *XMCD* en el hilo ya que la proyección de la magnetización del hilo en la dirección del haz es nula. Esta serie de medidas *XMCD* se presenta en la Fig. 3.22.

3.7. Apéndice 2: Caracterización magnética: Microscopía de Fuerzas Magnéticas (MFM)

Se detalla a continuación la serie de medidas con el *MFM*, que da la sensibilidad a los polos magnéticos o *stray fields* con una mejor resolución espacial que el *PEEM*. Estas medidas se realizan en el mismo nanohilo de 180 nm y a la misma temperatura que el transporte eléctrico y el *PEEM* a 50 K. Las medidas se hacen a *ZFC* y aplicando después un campo magnético en el plano de la muestra, en la dirección del hilo y sentido de la flecha roja como muestra el esquema de la Fig. 3.23.

En la Fig. 3.24 se presentan resultados de medidas a 50 K empezando a +1000 Oe y reduciendo de 100 en 100 Oe hasta campo 0. Los *stray fields* o polos magnéticos positivos se presentan en color azul, y con contraste rojo los de sentido opuesto o polos magnéticos negativos.

La Fig. 3.24-a muestra el dispositivo en saturación, no se observan polos magnéticos a lo largo del hilo, lo que indica una imanación en la dirección de hilo

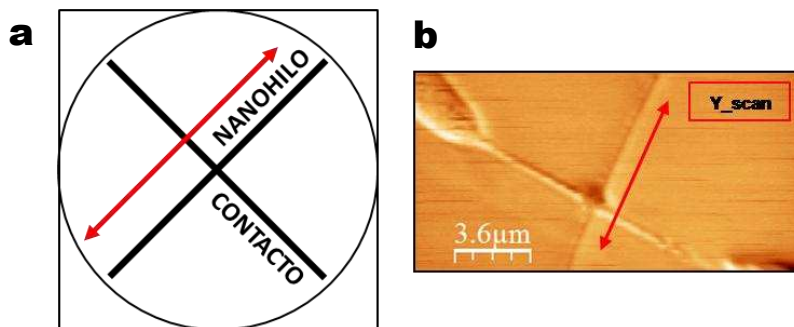


Figura 3.23: En el esquema de la izquierda se representa el nanohilo en color verde y la dirección del campo magnético aplicado en rojo. La imagen *MFM* de la derecha muestra la topografía del dispositivo con el nanohilo.

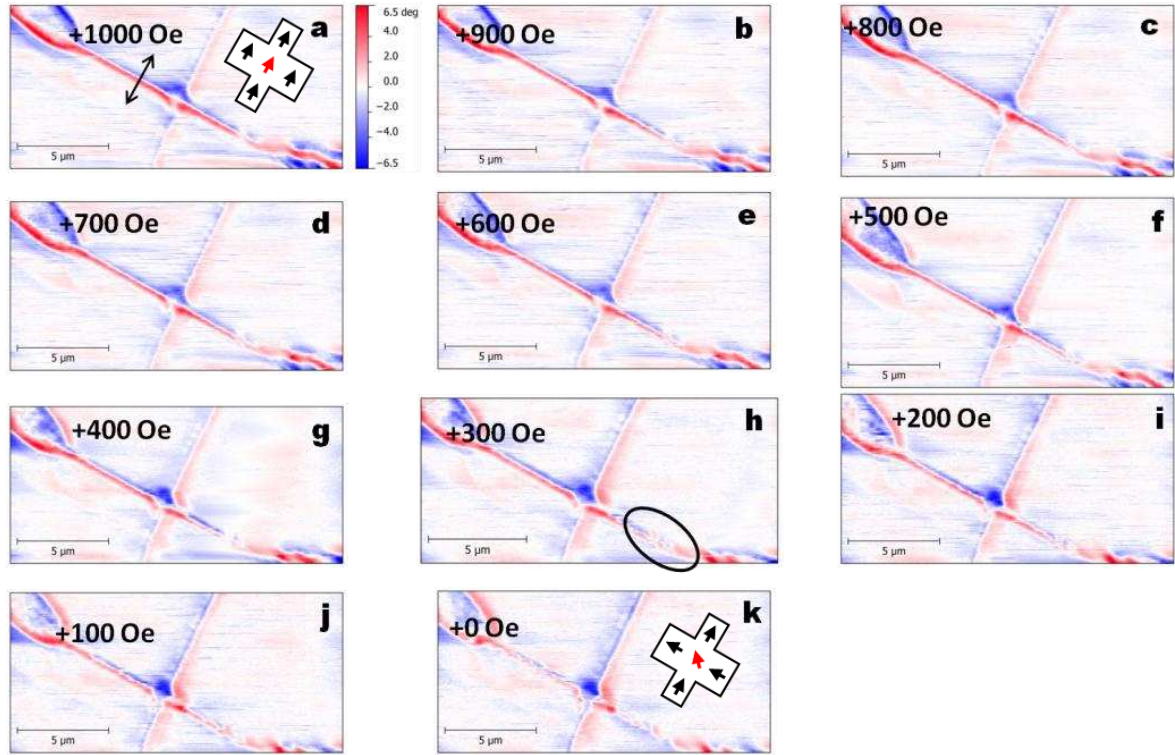


Figura 3.24: Secuencia de imágenes *MFM* del nanohilo con campo magnético aplicado en la dirección del mismo desde saturación positiva a 0 Oe.

y del campo magnético. En el contacto perpendicular sí se observa contraste azul-rojo en los bordes, como corresponde a tener la imanación también en la dirección del campo, y perpendicular a la dirección del contacto. Este contraste se mantiene en la cruz. El esquema resume, por tanto, las orientaciones en todas las zonas del dispositivo con el campo aplicado en saturación. Al disminuir el campo desde saturación Fig. 3.24-b-k, la orientación de la imanación en el nanohilo no varía, pero el contraste azul-rojo en el contacto se va perdiendo al llegar a 0 Oe. Se produce por tanto una rotación de la imanación en el contacto, siguiendo su anisotropía de forma perpendicular al nanohilo. Esta rotación de 90° de la imanación del contacto modifica ligeramente la orientación de la imanación en la cruz, y la imagen Fig. 3.24-k de 0 Oe aparece con los polos ligeramente rotados, como se muestra en el esquema de la derecha.

A continuación se analiza la serie de medidas con campo negativo desde 0 Oe, Fig. 3.25. Al invertir el campo magnético se observa un gran efecto en la cruz. A -100 Oe se observa como los polos magnéticos positivos azules y negativos rojos rotan en sentido antihorario, Fig. 3.25-b. Esta rotación continúa a -200 Oe, pero en este campo la imanación en la cruz ya tiene una componente en el sentido negativo del campo y se ha generado una pared de dominio. Esta pared se observa en la Fig. 3.25-c, en el lado derecho de la cruz se encuentran los polos negativos rojos, pero a poca distancia en el nanohilo aparece una zona de polos azules, que indica una pared de dominio cercana a 180° . La

104

4 Estructuras magnéticas exóticas: FM en interacción con HTS

4.1. Introducción

El carácter antagonista entre la superconductividad y el ferromagnetismo ha inspirado diversos estudios sobre nuevos efectos de proximidad en sistemas híbridos con películas delgadas de materiales superconductores (*SC*) y ferromagnéticos (*FM*), en los cuales hay una interfaz *SC/FM* con ambos fenómenos en contacto directo. La mayor parte de la investigación en estos sistemas se ha centrado en el efecto del campo de canje del *FM* en el estado fundamental del *SC* [125]. Sin embargo, el enfoque contrario, i.e. la impresión de estados magnéticos emergentes en el material ferromagnético causados por el superconductor, ha permanecido bastante inexplorado, entre otras razones porque los estudios con capacidad de resolución espacial de las interacciones de *SC/FM* son escasos. El desarrollo del campo de la espintrónica en los últimos años ha renovado el interés en el tema. Entre las diferentes posibilidades de elección de materiales, una de las más interesantes es el uso de materiales superconductores de tipo II, dado que el campo magnético penetra en el interior de ellos en el estado mixto.

La penetración del campo magnético en superconductores de tipo II en el estado mixto se trata en la sec. 1.3.1 de la introducción en el marco del modelo de Bean [73]. Este modelo de estado crítico asume que la densidad de corriente dentro del *SC* puede tomar los valores $+J_c$, $-J_c$, ó 0 en cualquier punto del *SC*, y define que el campo magnético necesario para tener la remanencia máxima en una estructura *SC* es dos veces el campo de penetración completa, H^* (Fig. 1.19). De acuerdo a este modelo, al aumentar el campo H externo, este penetra por los bordes del *SC* en vórtices o cuantos de flujo magnético y su anclaje o *pinning* debido a centros de anclaje intrínsecos produce un gradiente de densidad de flujo magnético (Fig. 4.1-a). Se producen entonces unas supercorrientes perpendiculares a B de acuerdo a la ley de Ampère, $\mu_0 j = \nabla x \vec{B}$, originadas en la no cancelación de las supercorrientes circulares alrededor de los vórtices, que apantallan el campo externo en $+z$. En la Fig. 4.1-b se presenta un detalle del origen de las supercorrientes en una estructura superconductora cuadrada al penetrar completamente el campo H dentro del *SC*. Las supercorrientes generan a su vez un campo magnético dipolar H_{sc} (ley de Biot y Savart)

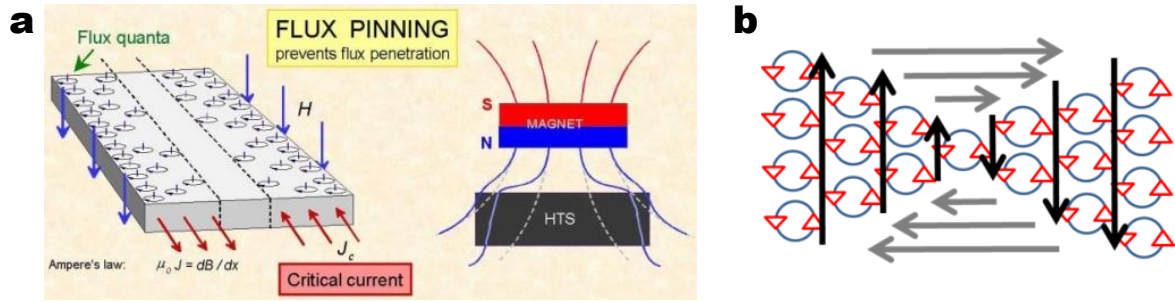


Figura 4.1: (a) Representación esquemática de la penetración de los vórtices y las supercorrientes de apantallamiento de valor J_c en una cinta superconductora de anchura a al aplicar un pulso de campo perpendicular H . (b) Detalle del origen de las supercorrientes en el plano de la muestra que apantallan H externo.

que se puede estudiar con ayuda de materiales ferromagnéticos en proximidad con el *SC*.

La forma del patrón magnético creado por los campos magnéticos de las supercorrientes que apantallan al campo depende de la geometría del superconductor. Las supercorrientes en un superconductor micro estructurado forman dominios de flujo de corriente casi uniforme y paralelo a la frontera de la estructura, cuya dirección cambia abruptamente en los límites del dominio, y cuyo sentido de rotación (helicidad) depende de la historia magnética. La Fig. 4.2 muestra la generación del patrón magnético por un cuadrado superconductor de *YBCO* [11]. Si se aplica un campo H externo positivo perpendicular, las supercorrientes giran con helicidad tal que se genera un campo H_{sc} cuya componente z es negativa, es decir se opone al campo aplicado (Fig. 4.2-a). Si ahora se disminuye H hasta 0 llegando a remanencia, se observa que en respuesta a este cambio magnético, el sentido de las supercorrientes se invierte dando lugar a una componente z de H_{sc} positiva (Fig. 4.2-b). Para tener supercorrientes en toda la superficie de la estructura *SC* en remanencia se necesita que el campo aplicado sea igual o mayor al campo de penetración completa H^* , como se comenta en la sec. 1.3.5 del capítulo de introducción. En la figura Fig. 4.2-c se presentan las tres componentes (x , y , z) del campo magnético creado por la distribución de supercorrientes de la Fig. 4.2-a calculado numéricamente mediante la ley de Biot y Savart. Se observa que las cuatro zonas de supercorrientes homogéneas en Fig. 4.2-a forman cuatro regiones magnéticas triangulares correspondientes en el plano de la estructura (x, y), en las que la magnetización está orientada idealmente perpendicular al lado del cuadrado. Aparece también una cierta componente en z , máxima en el centro. Un material magnético con imanación en el plano o perpendicular a él, depositado sobre la estructura superconductora, será sensible a estos campos magnéticos creados por las supercorrientes. Para un cuadrado de $20\ \mu\text{m}$ de *YBCO* estas supercorrientes generan campos dipolares H_{sc} del orden de 200 Oe en el plano y 400 Oe en la dirección perpendicular [11], que pueden orientar la magnetización de

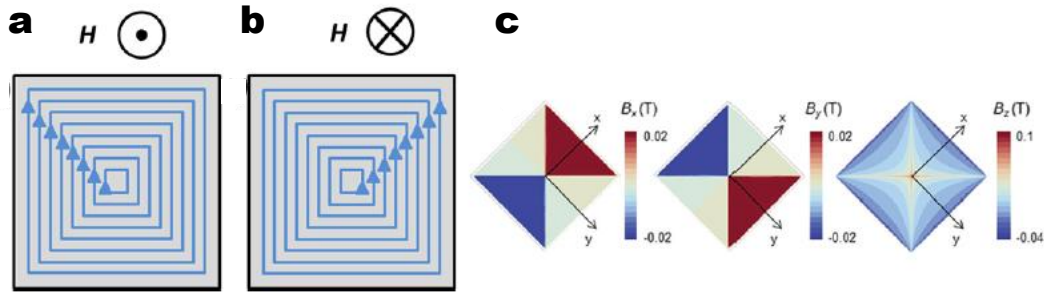


Figura 4.2: (a) Líneas de flujo de corriente (azul) en un cuadrado superconductor de tipo II al aplicar un campo $H = 2H^*$ perpendicular en el sentido indicado. (b) Supercorrientes al pasar a remanencia. (c) Cálculo del perfil de campo magnético generado por (a), tomado de [11] .

materiales *FM* con campos coercitivos menores.

4.1.1. Estado del arte y objetivo

La caracterización de patrones magnéticos creados por supercorrientes y su corriente crítica asociada, se estudia mayormente por medio del efecto Kerr magneto-óptico (*MOKE*). Una capa magneto-ópticamente activa depositada en la parte superior del *SC* sirve para visualizar el campo magnético que genera el *SC* a través de la medida de la rotación Kerr y el cambio en la elipticidad de la luz reflejada por el material en presencia del *SC* [126]. Más recientemente, el grupo de G. Schutz en el Instituto Max Plank traslada esta idea al mundo de los rayos X blandos y realiza la caracterización espacial de las supercorrientes por microscopía de transmisión de rayos X resuelta en el espacio. El uso de microscopía de rayos X blandos ofrece varias ventajas con respecto al efecto Kerr, siendo quizá su resolución lateral (20-30 nm vs 300 nm) la más destacable. Es este caso el material magneto-ópticamente activo es Permalloy (Py, Fe 20 %, Ni 80 %). La sensibilidad magnética que se consigue es, en este caso, mediante el uso de radiación incidente circularmente polarizada y la detección del dicroísmo circular magnético de rayos X (*XMCD*) asociado a materiales ferromagnéticos [127,128]. Más importante si cabe es el primer estudio del uso del material *SC* para modificar a voluntad la estructura de dominios magnéticos de la película de *FM* que se encuentra en la parte superior de la muestra. En este caso, la distribución de supercorrientes crea una distribución de campo magnético dipolar o *stray field* que depende de la geometría del área definida por la estructura del superconductor [126]. Esta distribución de campo magnético permanece después de eliminar el campo externo, y se puede utilizar para imprimir topologías de espín no triviales en las películas delgadas magnéticas depositadas en la parte superior [11].

En este capítulo se presenta un estudio magnético mediante microscopía de

fotoemisión de electrones (*Photoemission Electron Microscopy, PEEM*) con luz incidente en el rango de los rayos X blandos, de los patrones magnéticos que se imprimen en muestras micro y nanoestructuradas de *YBCO* con una capa ferromagnética superior con distintas direcciones de fácil imanación. Se utiliza el *PEEM* como técnica de microscopía magnética por ofrecer una resolución lateral (30 nm) comparable a la microscopía de transmisión y por no requerir el uso de muestras específicas para experimentos de transmisión.

En un primer bloque se analiza el caso en el que la imanación de la capa *FM* está orientada en el plano de la muestra. Este es el caso del Permalloy. Este material es muy utilizado tanto en industria como en investigación debido a su pequeño campo coercitivo en el plano de 13 Oe que apenas varía con la temperatura, y por su elevada temperatura de Curie, muy por encima de temperatura ambiente. El primer objetivo de este bloque es estudiar como el tamaño de las estructuras de *YBCO* afecta a la impresión de los patrones magnéticos generados por el *SC* en el Py. Se estudian estructuras con dimensiones laterales en un rango desde las 20 μm hasta tamaños por debajo de la micra. El estudio se plantea con dos tipos de muestras; (i) recubiertas de una capa continua de Py y (ii) con el Py estructurado con las mismas dimensiones laterales que el superconductor. Un segundo objetivo es el estudio de la persistencia de los estados magnéticos imprimidos a baja temperatura por encima de la temperatura de transición superconductora y hasta temperatura ambiente, comprobando su estabilidad térmica y temporal para su posible aplicación en memorias no volátiles.

En un segundo bloque se analiza la impresión magnética del superconductor en una capa con magnetización perpendicular al plano de la muestra, para ello se recubre la muestra con las estructuras de *YBCO* con una multicapa ferromagnética de Co-Pt. El objetivo es la caracterización del comportamiento magnético de la multicapa primeramente con el *YBCO* en estado metálico, para analizar después la influencia de las supercorrientes en el magnetismo de la capa de Co-Pt al pasar al estado superconductor.

El trabajo experimental que se presenta en este capítulo se lleva a cabo gracias a la colaboración con el grupo del profesor Javier Villegas de la *Unité Mixte de Physique CNRS/THALES* en Palaiseau (París). Asimismo, toda la caracterización de los patrones magnéticos mediante imágenes de *XMCD* en el *PEEM* que se presenta en este capítulo se realiza en sucesivas estancias gracias a tiempos de medida adjudicados en el sincrotrón BESSY II del *Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie* de Berlín (Alemania), y en colaboración con el Dr. Sergio Valencia.

4.2. Proceso de nanofabricación

En la preparación de las muestras de este aparatado se utilizan las técnicas de crecimiento y nanofabricación ya descritas en el capítulo 2, pero con algunos aspectos específicos que se detallan brevemente a continuación. Para la fabricación de las muestras es necesario un sustrato conductor para evitar efectos de carga en el proceso de medida con *PEEM*. El sustrato que se emplea es un monocristal de titanato de estroncio dopado con niobio al 5 % (*Nb-STO*) sobre el cual se crece una película delgada de *YBCO* mediante la técnica *sputtering* de alta presión de oxígeno (sec. 2.1). Para realizar las estructuras se crecen inicialmente películas delgadas de diferentes espesores de *YBCO* (20 - 250 nm) y posteriormente se hace una litografía electrónica con resina negativa según un patrón que contiene estructuras cuadradas y circulares de distintos tamaños reduciendo hasta 500 nm. La Fig. 4.3-b muestra las estructuras de 20 μm .

Tras la litografía la muestra se somete a un proceso de comido o ataque que varía ligeramente de unas muestras a otras. En un primer momento se realiza el comido de *YBCO* mediante ataque químico húmedo (*HCl*) y posteriormente se mejora el proceso realizando un ataque físico del *YBCO* mediante haz de iones en el laboratorio *CNRS/THALES* (París). La Fig. 4.4 muestra la comparación de imágenes de espectroscopía de absorción de rayos X (*XAS*) que se obtienen en el borde L_3 del Fe (708 eV) para círculos de diámetro 20 y 4.5 μm , realizadas mediante las dos metodologías de nanofabricación. La nanofabricación mediante ataque físico muestra estructuras de 4.5 μm de diámetro perfectamente definidas y permite estudiar estructuras hasta tamaños de 500 nm.

Para estudiar el patrón magnético en el plano de la muestra, se utiliza el Py, material *FM* con el eje de imanación fácil en el plano, que se deposita de dos maneras; continuo y nanoestructurado. En la primera serie de muestras a estudiar, una vez se nanofabrican las estructuras de *YBCO* se deposita una

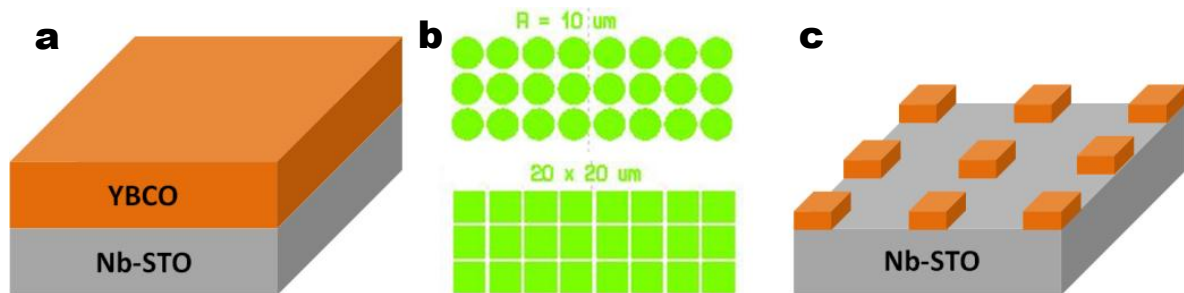


Figura 4.3: a) Esquema de la película delgada de *YBCO* sobre el sustrato de *Nb-STO*.
 b) Máscara que se emplea para definir las estructuras, detalle de las estructuras de 20 μm .
 c) Esquema de las nanoestructuras tras la litografía y el proceso de comido.

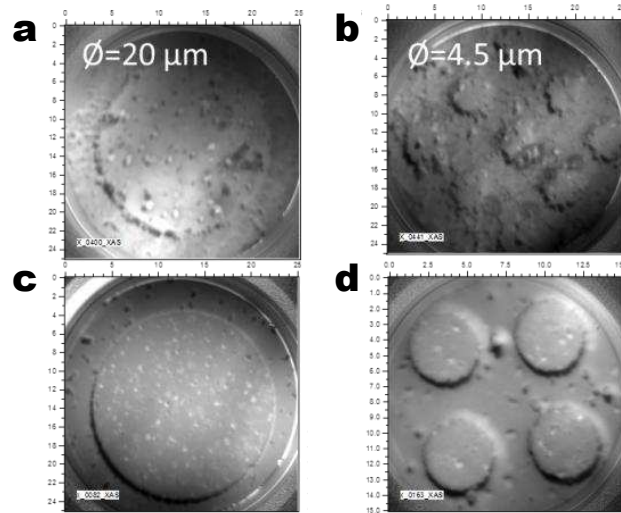


Figura 4.4: (a) y (b) Estructuras realizadas mediante ataque húmedo. (c) y (d) Estructuras fabricadas mediante haz de iones. Imágenes XAS en el borde $L_{2,3}$ del Fe para una muestra con 200 nm de YBCO cubierto con 4 nm de Py continuo, a $T = 50$ K. Las imágenes muestran la escala de longitud en el plano xy en micras.

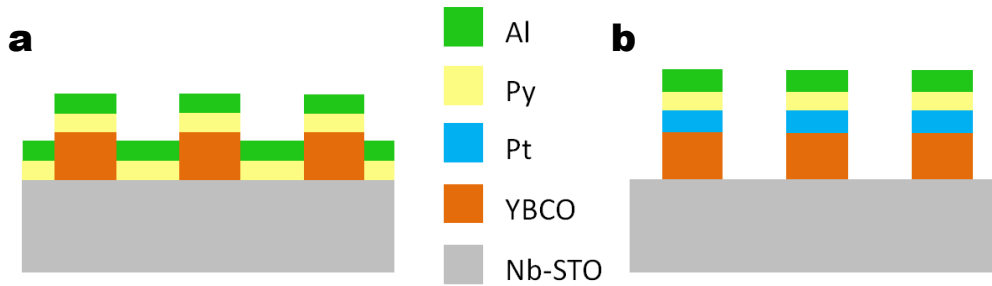


Figura 4.5: Esquema de las nanoestructuras utilizadas. (a) Caso A: capa continua de *Py* y (b) Caso B: *Py* nanoestructurado.

capa continua de Py que se protege con un recubrimiento o *capping* de 3 nm de aluminio para evitar la oxidación del Py, Fig. 4.5-a. La deposición del Py (4 nm – 10 nm) en las primeras muestras se realiza mediante pulverización catódica *in situ* en la cámara del *PEEM*, y posteriormente con un sistema con magnetron en *CNRS/THALES*. Para nanoestructurar el Py en la segunda serie de muestras, se crece la película delgada de YBCO y se deposita la capa de Py con un *buffer* de 3 nm de Pt, y posteriormente un *capping* de 3 nm de Al de protección. Se procede entonces a litografiar el patrón de estructuras sobre todo el material depositado encima del Nb-STO, consiguiendo que la capa FM está nanoestructurada junto con el YBCO (Fig. 4.5-b).

Para estudiar el patrón magnético en la dirección perpendicular a la superficie de la muestra, se utiliza un material FM con la magnetización perpendicular al plano de la muestra, que se consigue depositando una multicapa de 5 repeticiones de Pt (1 nm)\Co (0.6nm) sobre toda la superficie en *CNRS/THALES*.

La definición de las estructuras superconductoras se hace de la misma manera explicada arriba para el Py y con el mismo patrón de la Fig. 4.5-b. La multicapa Co-Pt tiene una magnetización remanente cercana al 100 % en el plano perpendicular a la muestra, que va a permitir estudiar el efecto magnético de las supercorrientes en esa dirección perpendicular.

4.3. Nanoestructuras de YBCO-FM con imanación en el plano

4.3.1. Capa de Py continua

Para estudiar el patrón magnético creado por el superconductor en el plano de la muestra, se escogen como ya se ha mencionado anteriormente el Py debido a su pequeño campo coercitivo en el plano el cual, para un rango de temperaturas entre 5 y 100 K, toma un valor ≈ 13 Oe. El patrón de dominios magnéticos impreso en el Py por el YBCO se estudia mediante imágenes de XMCD en el borde L_3 del Fe en remanencia después de un pulso de campo magnético perpendicular a la superficie de la muestra mayor que dos veces el campo de penetración total, $H > 2H^*$, a una temperatura por debajo de la $T_c = 90$ K del superconductor, generalmente a 50 K.

En la Fig. 4.6 se presenta el patrón magnético característico que se observa en cuadrados de YBCO de 20 μm de lado y 250 nm de altura, recubiertos por 4 nm de Py, después de aplicar un pulso de campo $H = 500$ Oe perpendicular al plano de la muestra, a 53 K. El código de color XMCD se especifica en la leyenda, es azul para XMCD positivo, lo que significa una proyección de la magnetización positiva en la dirección del haz. El color rojo indica XMCD negativo, dado por una magnetización con proyección antiparalela al haz, y el color blanco XMCD indica magnetización perpendicular al haz o cero. En el estado de remanencia, el campo H ha disminuido del valor máximo a cero, y por tanto el patrón de supercorrientes compensa esa disminución, y tiene la helicidad de la Fig. 4.7-a, generando el patrón magnético correspondiente. El mismo proceso de impresión de dominios con un pulso perpendicular a temperaturas por encima de 90 K fracasa y no se establece esta estructura de dominios. Se descarta de esta manera el origen en la interacción *Dzyaloshinskii-Moriya* presente en el YBCO ya que, en ese caso, dicha impresión no desaparecería por encima de la T_c [129].

La textura magnética no trivial que aparece en el plano xy como consecuencia de las supercorrientes del YBCO difieren de otro tipo de patrones conocidos. En la Fig. 4.7 se presenta un esquema del patrón magnético inducido en el Py (a), comparado con un patrón de dominios de Landau en (b) manteniendo el código de colores del XMCD. Se observa cómo a pesar de que la forma del patrón

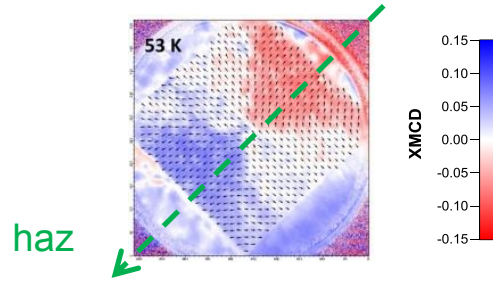


Figura 4.6: Imagen *XMCD* en remanencia a 53 K de una estructura cuadrada de *YBCO* recubierto por una capa continua de Py, después de aplicar un campo perpendicular $H = 500$ Oe. Por claridad, las flechas indican el sentido de la magnetización en cada punto. La dirección y sentido del haz se marca en la esquina superior derecha. Código de colores: azul significa magnetización con proyección paralela y rojo antiparalela al haz incidente.

es similar, la orientación de la magnetización es diferente. Los dominios con proyección de la magnetización paralela y antiparalela al haz se corresponden con los triángulos izquierdo (azul) y derecho (rojo) respectivamente, mientras que la orientación perpendicular, la cual no proporciona señal *XMCD* y por tanto presenta color blanco, se corresponde con los triángulos superior e inferior (Fig. 4.7-a). En el caso de que el patrón de dominios magnéticos fuese de tipo Landau, los dominios con orientaciones paralela y antiparalela se observarían en los triángulos superior e inferior respectivamente y el contraste blanco correspondería a los triángulos izquierdo y derecho (Fig. 4.7-b).

4.3.1.1. Influencia del Espesor

El primer paso es el estudio de la generación del patrón magnético para espesores decrecientes del *YBCO*, ya que idealmente un espesor menor de la capa de *YBCO* facilita el proceso de nanofabricación. Se presentan en la Fig. 4.8 las imágenes de *XAS* y de *XMCD* en el borde L_3 del Fe de un cuadrado de $11 \times 11 \mu\text{m}$ en dos muestras con espesores de 200 y 20 nm de *YBCO* en los paneles de la izquierda y derecha, respectivamente. Las imágenes se toman para

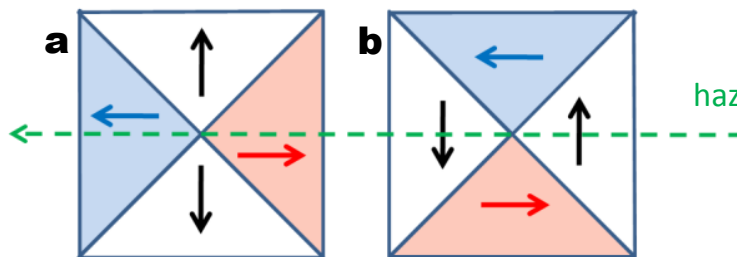


Figura 4.7: (a) Esquema del patrón magnético inducido en el Py por las supercorrientes del *YBCO*. (b) Patrón magnético correspondiente a una estructura de dominios de Landau en el Py. Se utiliza el mismo código de colores *XMCD* de la Fig. 4.6 .

valores de campo en remanencia (H_{rem}). En ambos casos las estructuras están recubiertas por una capa continua de 4 nm de Py, y se genera el patrón magnético mediante un pulso de campo H perpendicular de 500 Oe. En la muestra de 20 nm de espesor de *YBCO* no se observa ningún patrón relacionado con el *SC*, es decir, la configuración magnética del Py parece la misma encima de las estructuras que en el espacio entre ellas. Para 20 nm de *YBCO* la superconductividad no es suficientemente robusta a 50 K para generar la impresión magnética del Py. En películas ultra delgadas de *YBCO* se observa una depresión de la superconductividad como consecuencia del reducido acoplamiento en la dirección z entre diferentes celdas unidad de *YBCO*. Para espesores de 1-2 nm que corresponden a 1-2 celdas unidad de *YBCO*, la T_c disminuye hasta los 30 K [130].

En la Fig. 4.8-a se observa que un espesor de 200 nm en la capa de *YBCO* es suficiente para generar el patrón de dominios magnéticos, que ya se había encontrado para 250 nm de espesor, en [11] y la Fig. 4.6. Se pueden distinguir los cuatro dominios triangulares encima del *YBCO*, uno rojo, uno azul y dos blancos, que son consecuencia de los campos dipolares H_{sc} generados por la supercorrientes que apantallan el campo perpendicular aplicado previamente. Para demostrar que las regiones blancas de la Fig. 4.8 no se deben a una ausencia de orden magnético (ferromagnetismo), se procede analizar varios cuadrados de la misma muestra rotados con respecto del haz incidente 30° , 60° y 90° . La Fig. 4.9 muestra la configuración magnética de los cuadrados de $20\ \mu\text{m}$ de lado y 200 nm de espesor de *YBCO*, cambiando el ángulo entre la radiación entrante y la perpendicular al lado del cuadrado entre 0° y 90° , junto con la escala de colores *XMCD*. Como se puede observar, la rotación

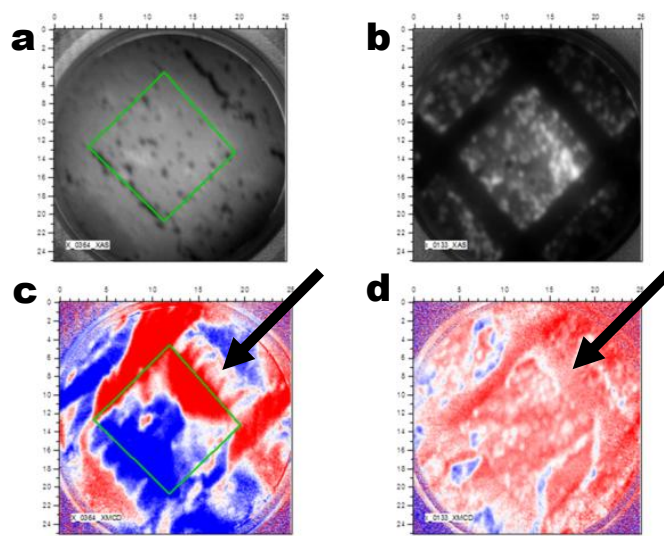


Figura 4.8: Imágenes *XAS* (a y b) y *XMCD* (c y d) a 50K para un cuadrado de $11\ \mu\text{m}$ de lado. (a,c) y (b,d) corresponden a estructuras *YBCO* de espesor 200 nm y 20 nm, respectivamente.

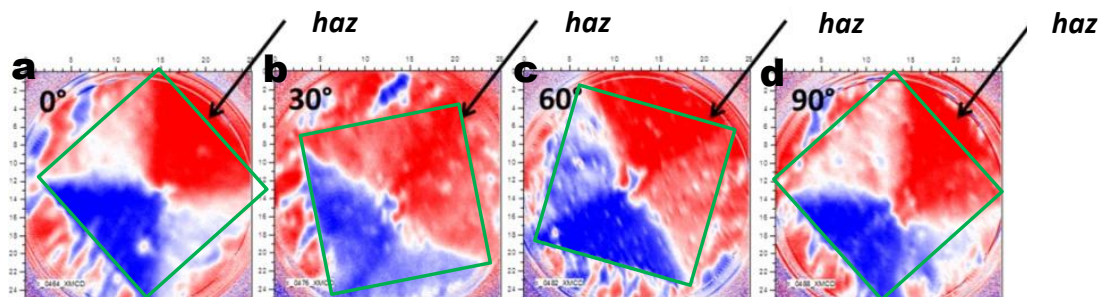


Figura 4.9: Imágenes *XMCD* de cuadrados de $20\mu m$ de lado para los cuales cambia el ángulo entre la dirección del haz incidente y el cuadrado a 50 K. $H_{rem} = 1000$ Oe.

de la estructura conduce a la observación de un *XMCD* distinto de cero para los dominios triangulares originariamente blancos, indicando la presencia de magnetismo en toda la superficie del cuadrado. En la imagen de 60° se puede apreciar especialmente bien el tono más oscuro de azul y rojo para los dominios que están más alineados con el haz, paralela y anti paralelamente respectivamente, y en un tono más claro, los triángulos laterales cuya imanación tiene mayor ángulo con el haz, que está marcado en la esquina superior derecha con la flecha «haz».

4.3.1.2. Influencia del tamaño de las estructuras en cuadrados

En este apartado se realiza el estudio de estructuras de tamaños laterales menores para ver la supervivencia de los estados magnéticos definidos por las supercorrientes del *YBCO*. En la Fig. 4.10 se observa la impresión del patrón magnético en el Py al disminuir el tamaño lateral de la estructura cuadrada de 20 hasta $2\mu m$, después de aplicar un pulso de campo perpendicular $H = -1000$ Oe. La capa *YBCO* tiene 200 nm de espesor y está recubierta con una película de Py continua de 4 nm. El patrón magnético de cuatro triángulos, azul, rojo y dos blancos, debido a las supercorrientes del *YBCO* se observa muy bien definido para los tamaños mayores y se va distorsionando al disminuir el tamaño de las estructuras. En los cuadrados de $5\mu m$ de lado aún se puede distinguir, pero por debajo de $4\mu m$ el patrón desaparece, como se puede observar en la última imagen de la serie de la Fig. 4.10, que tiene cuadrados de $2\mu m$ de lado.

Para analizar las imágenes de los cuadrados más pequeños se realiza el promediado de imágenes *XMCD* de varios cuadrados del mismo tamaño, de forma que se aumenta la resolución del patrón magnético común a las estructuras. En la Fig. 4.11 se muestra el promedio de imágenes *XMCD* para cuatro cuadrados de $4 \times 4\mu m$ en la misma muestra (200 nm de *YBCO* y 4 nm de Py continuo). Se puede observar que, aunque las imágenes no presentan dominios triangulares o cuadrados perfectamente definidos, la impresión del patrón magnético

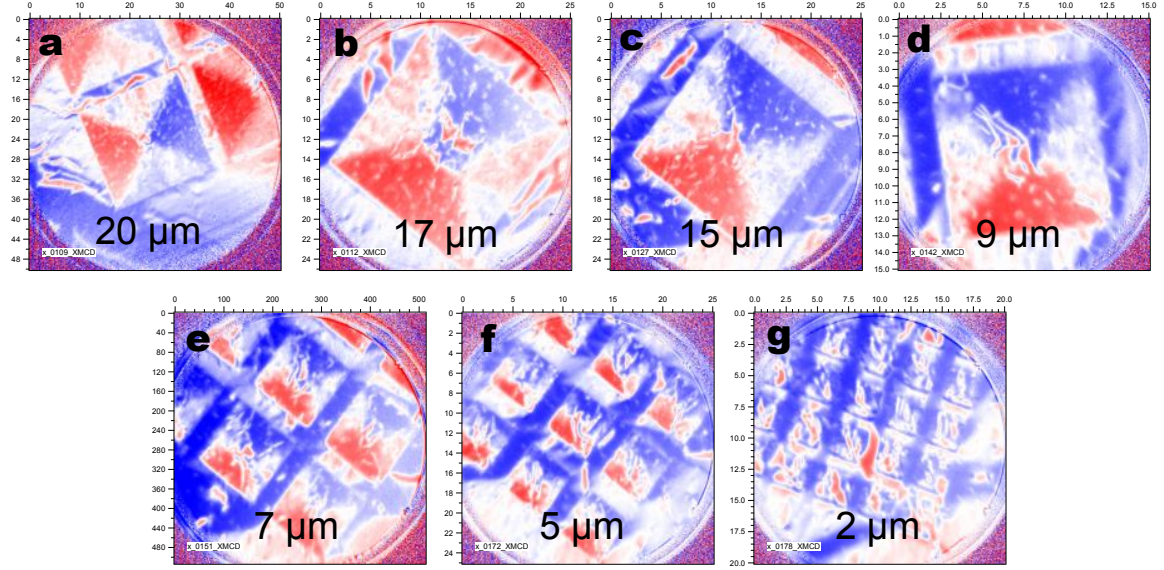


Figura 4.10: XMCD para muestras con $200\text{ nm YBCO} + 4\text{ nm de Py}$ continuo. Cuadrados de distintos tamaños. $H_{\text{rem}} = 1000\text{ Oe}$.

observado en tamaños mayores, y que es diferente al intrínseco del Py, es aun visible.

4.3.1.3. Influencia del tamaño en discos

Se estudia ahora la impresión magnética en estructuras de YBCO con forma de discos. En este caso las supercorrientes tienen trayectorias circulares continuas concéntricas siguiendo la frontera circular de la estructura de YBCO. Las supercorrientes circulares provocan un patrón magnético con una rotación continua de la imanación como consecuencia del cambio de dirección continua de las supercorrientes, y una cierta componente fuera del plano en el centro y en la frontera del disco, patrón que tiene cierta semejanza con el de un *skyrmion*.

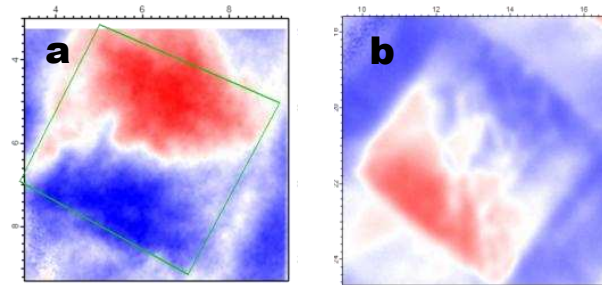


Figura 4.11: (a) Promedio XMCD de cuatro cuadrados a 50 K para cuadrados de 4 μm de lado de la misma muestra de la figura Fig. 4.10, mostrando el patrón característico del SC. (b) Promedio de cinco cuadrados similares en una muestra de las mismas características. $H_{\text{rem}} = 1000\text{ Oe}$.

La Fig. 4.12 muestra las imágenes de *XMCD* a 50 K para muestras nanofabricadas con los mismos parámetros (200 nm de *YBCO* + 4 nm *Py* continuo) y tamaños decrecientes de discos, desde 20 a 2 μm de diámetro. La primera imagen corresponde al estado virgen *FM* después del *ZFC* para el disco de 20 μm de diámetro y muestra la distribución de dominios magnéticos propia del *Py*. La segunda imagen, es el mismo disco de 20 μm de diámetro después de aplicar un pulso de campo *H* perpendicular de -1000 Oe. El *XMCD* presenta el mismo valor a lo largo de la dirección radial y varía dependiendo de su posición angular. Es máximo en la dirección radial paralela al haz (azul). A partir de esta posición el *XMCD* decrece de manera cosenoidal con el ángulo entre el eje radial y la radiación incidente de manera que toma el valor máximo negativo para un ángulo de 180° (Fig. 4.12). Esta configuración es compatible con que la magnetización del *Py* en el círculo está dirigida hacia el centro de la estructura (independientemente de su posición). Es decir, una configuración similar a un monopolo magnético, o un *skyrmion* si se tienen en cuenta las componentes fuera del plano (de signo opuesto) tanto en el centro como en los bordes [11]. El resto de imágenes muestra la impresión del patrón magnético al disminuir el diámetro de los discos; el patrón se mantiene hasta 4.5 μm de diámetro. Para una mejor visualización de la imagen de 4.5 μm se realiza el promedio de ocho estructuras. La última figura con los discos de 2 μm de diámetro no muestra el patrón de imanación radial inducido por el superconductor, sino más bien una distribución de dominios magnéticos similar a la primera figura en estado virgen. Al hacer el promedio de ocho discos de 2 μm de diámetro se

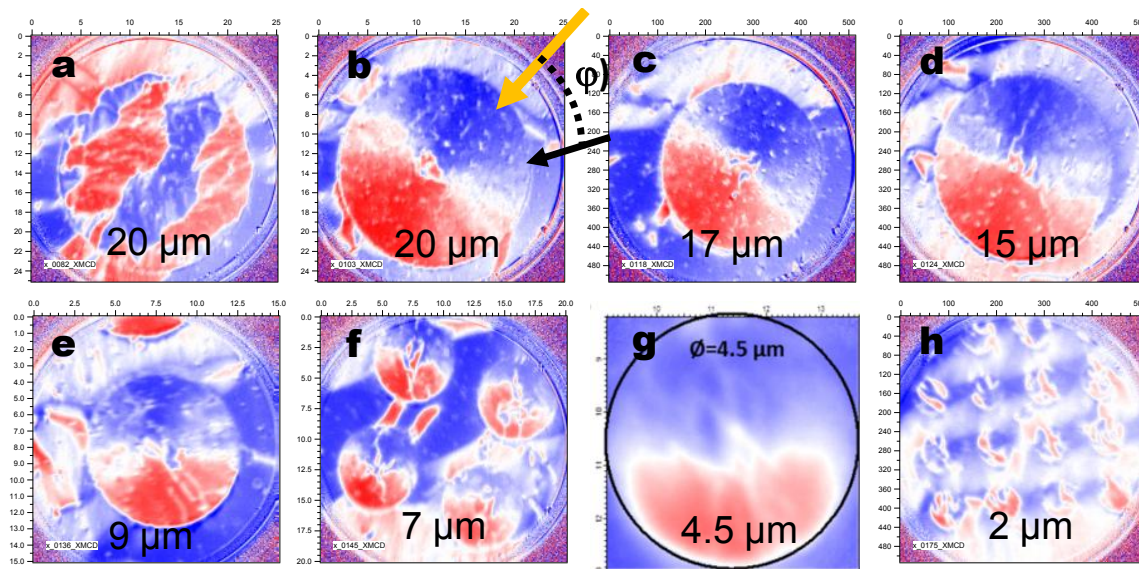


Figura 4.12: *XMCD* para muestras con 200 nm de *YBCO*, 4 nm de *Py* y distintos tamaños de discos. La primera imagen corresponde al estado virgen *FM* después del *ZFC* para el disco de 20 μm de diámetro. Para 4,5 μm de diámetro se muestra el promedio de ocho estructuras. $H_{\text{rem}} = 1000$ Oe.

obtienen resultados similares a los que se obtienen en cuadrados, se observa la impresión de la estructura magnética del Py cuando éste está en contacto con nanoestructuras de *YBCO* de hasta 4 μm de diámetro.

Para confirmar que el patrón magnético observado en el Py se debe a las supercorrientes del *YBCO* para las estructuras más pequeñas, se puede cambiar la helicidad de las supercorrientes cambiando el signo del pulso aplicado de campo magnético. Al revertir la helicidad de las supercorrientes el patrón generado debería ser el opuesto al creado con el pulso positivo. En la Fig. 4.13 se muestra a la izquierda la imagen de *XMCD* de un disco de 4 μm de diámetro después de aplicar un campo positivo $H = 1000$ Oe, promediado a ocho estructuras para mejorar la resolución de la señal. La figura de la derecha es la misma imagen *XMCD* después de aplicar un campo negativo $H = -1000$ Oe, promediada también en las mismas ocho estructuras. Se observa que los dominios cambian de color rojo a azul, los que antes tenían una proyección paralela al haz se ponen antiparalelos, y viceversa. Esto demuestra el cambio de helicidad en las supercorrientes del *YBCO*, (Fig. 4.2-a), y confirma la supervivencia de la impresión magnética del superconductor en el Py para el disco de 4 μm de diámetro.

La desaparición del patrón magnético imprimido por el superconductor en el Py para estructuras de longitudes de 4 μm es un resultado inesperado, puesto que estas longitudes son mayores que las longitudes características de la superconductividad. Sin embargo, hay dos efectos que pueden explicar este fenómeno. Por un lado, al hacer las estructuras más pequeñas, la relación entre la frontera de la estructura y el volumen o *bulk* del *YBCO* se hace más grande, y por tanto defectos creados en el proceso de nanofabricación en el borde de la estructura pueden disminuir la corriente crítica, y el campo creado por ellas proporcionalmente. En segundo lugar, al tener supercorrientes en estructuras más pequeñas que se extienden sobre menos distancia, el campo magnético dipolar asociado es menor. Simulaciones preliminares de cuadrados de *YBCO* muestran que el campo H_{sc} generado por el superconductor disminuye acusa-

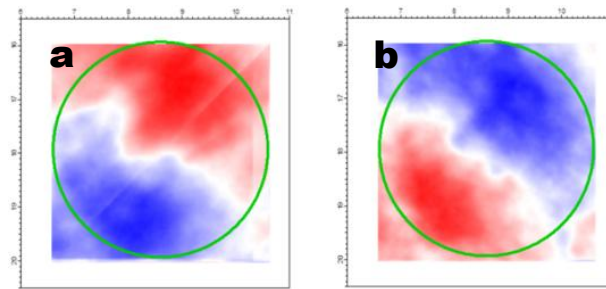


Figura 4.13: Promedio del *XMCD* medido para ocho discos de 4 μm de diámetro para (a) $H_{\text{rem}} = -1000$ Oe y (b) $H_{\text{rem}} = 1000$ Oe, respectivamente. Se observa la inversión de la estructura de dominios. Las imágenes muestran la escala de longitud en el plano *xy* en micras.

damente por debajo de las 5 μm de lado, pasando de valer 140 Oe a 90 Oe para cuadrados con 1.5 μm de lado. A pesar de que los valores son menores que los que se encuentran experimentalmente y de que 90 Oe es mayor que H_c del Py, se observa el mismo comportamiento cualitativo. Posiblemente el origen sea una combinación de los dos efectos propuestos.

4.3.1.4. Estabilidad del patrón magnético con la temperatura

En este apartado se estudia la estabilidad del patrón de dominios magnéticos impreso en el Py al aumentar la temperatura, en estructuras de *YBCO* cuadradas de 20 μm de lado. En este caso se utiliza una muestra con estructuras de 250 nm de espesor de *YBCO*, y se deposita *in situ* en la propia cámara del *PEEM* 4 nm de Py continuo. Se empieza el estudio a 53 K, aplicando el pulso de campo perpendicular $H = 500$ Oe que crea el patrón magnético, y se observa su evolución con la temperatura sin volver a aplicar ningún campo magnético externo. En la Fig. 4.14 se muestra la imagen del patrón a 53 K, y las imágenes *XMCD* de la evolución del patrón que se imprime (aumentando la temperatura hacia la derecha), con medidas cada 5 K hasta 90 K. A medida que aumenta la temperatura se puede ver que los triángulos blancos en los que la imanación es perpendicular al haz desaparecen. El contraste blanco se transforma en azul y rojo, pero manteniendo un área total similar de los nuevos contrastes rojo (*XMCD* negativo) y azul (*XMCD* positivo). El que aparezca color rojo o azul implica que la magnetización ha ganado, en estas regiones, una componente paralela o antiparalela al haz incidente (anteriormente totalmente ortogonal). Se observa que los nuevos dominios rojo (azul) en regiones originalmente blancas, tienden a ubicarse cerca del dominio triangular rojo (azul) original (53 K), tendencia que se agudiza aumentando la temperatura hasta 90 K. El ángulo al que gira o rota la magnetización local depende por tanto de los dominios cercanos, es decir, las regiones originalmente blancas cercanas al rojo (azul) también tienden a desarrollar dominios rojos (azul). En las regiones blancas hay especial sensibilidad a la rotación de la magnetización al aumentar la temperatura, porque una mínima desviación de la magnetización a 90° induce un *XMCD* positivo o negativo dependiendo de la dirección de rotación. En la Fig. 4.14 a 90 K se observa también la nucleación de pequeñas regiones de color rojo (azul) en las fronteras del triángulo que era inicialmente azul (rojo) a 53 K, lo que indica una pequeña probabilidad de rotación tal que se invierte la proyección sobre el haz al aumentar la temperatura.

A continuación se desarrolla un método para el análisis de los patrones de imanación en función de la temperatura que permita obtener información cuantitativa sobre su proceso de relajación al incrementar T por encima de T_c . En primer lugar se analizan las muestras que tienen la capa de Py continua y en el apartado siguiente se aplica a las muestras con Py nanoestructurado. Como

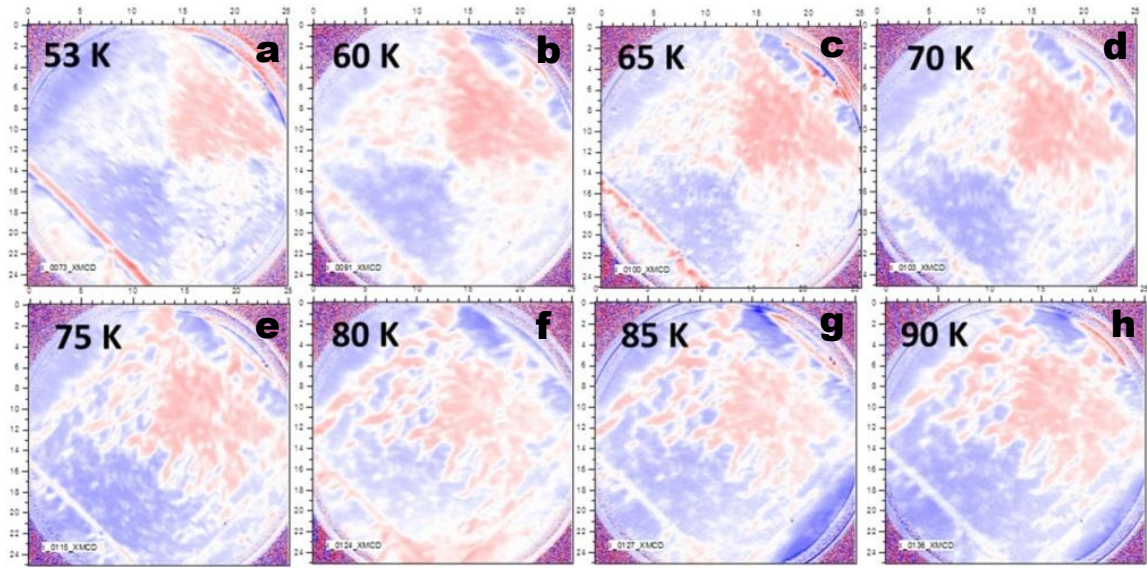


Figura 4.14: *XMCD* en estado de remanencia a distintas temperaturas para un cuadrado de $20\ \mu\text{m}$ de lado recubierto con una capa de Py continuo después de un pulso magnético de $500\ \text{Oe}$ a $53\ \text{K}$ al aumentar la temperatura hasta $90\ \text{K}$.

todas las imágenes de *XMCD* en función de la temperatura corresponden a cuadrados, se parte de la forma cuadrada de las estructuras, y el patrón de imanación que imprime el YBCO con imanaciones perpendiculares a los bordes del cuadrado a baja temperatura. Se divide el cuadrado en las cuatro regiones triangulares conforme a la distribución ideal de dominios magnéticos que se obtiene (Fig. 4.15), con su correspondiente código de color *XMCD*, es decir, rojo (*XMCD* negativo), azul (*XMCD* positivo) y dos regiones blancas que se corresponden, en la medida de baja temperatura, con imanación perpendicular al haz, según se demostró en la Fig. 4.9. Las regiones roja y azul muestran una disminución de la intensidad del color al aumentar la temperatura hasta $90\ \text{K}$ (Fig. 4.14), lo que significa un decremento del valor absoluto del *XMCD* con la temperatura. Esta reducción en el valor absoluto del *XMCD* puede tener dos posibles orígenes; (i) reducción de la magnetización del Py o (ii) al incrementar T la dirección de la magnetización deja de alinearse a lo largo del haz por lo que su proyección sobre este disminuye, disminuyendo así el *XMCD*. Puesto que no se esperan cambios relevantes en la magnetización del Py entre 50 y $90\ \text{K}$, se asigna el cambio en el *XMCD* a la rotación de la magnetización. Esto es debido a que al aumentar la temperatura la corriente crítica, y por tanto el campo H_{sc} creado por el SC, disminuye de manera que la estabilidad de los dominios magnéticos que se imprimen a $50\ \text{K}$ se ve comprometida [131–133].

Tal como se ha comentado, la variación del valor absoluto del *XMCD* en las zonas originalmente azules y rojas con la temperatura se debe a la reorientación de la magnetización dando lugar a una disminución de su proyección a lo largo del haz. De manera similar, esta reorientación da lugar a la aparición de domi-

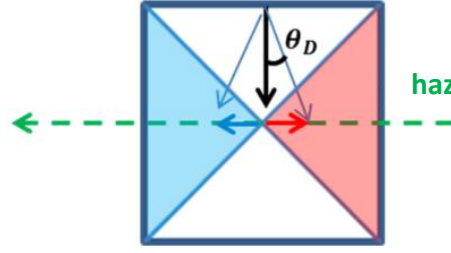


Figura 4.15: Esquema de una estructura híbrida *SC/FM* cuadrada. El cuadrado está dividido en cuatro triángulos o dominios. A baja temperatura las verticales aparecen en blanco en las imágenes *XMCD* como $XMCD = 0$ debido a la orientación ortogonal de la magnetización de estas regiones con respecto al haz incidente. A medida que la temperatura aumenta, la dirección de magnetización se aleja de la posición original, lo que conduce a una proyección paralela y antiparalela a la dirección del haz incidente.

nios rojos/azules en las zonas blancas que a 53 K presentaban una orientación ortogonal al haz ($XMCD = 0$), y aparece al subir la temperatura una cierta componente a lo largo del haz. Si bien es cierto que este ángulo de desviación de la magnetización es un parámetro local, es posible definir un ángulo promedio (θ_D) para poder cuantificar este fenómeno. Este ángulo de desviación representaría el ángulo al que apunta la magnetización promedio respecto de la orientación en el patrón ideal de baja temperatura Fig. 4.15. Este proceso de *desalineamiento* al aumentar la temperatura se muestra de manera esquemática en la Fig. 4.16, a baja temperatura (*LT*) la magnetización del triángulo azul está alineada con el haz y, por tanto, $XMCD_{Max} = XMCD_{LT}$ (flecha azul), en cambio, a alta temperatura (*HT*) la magnetización rota un ángulo θ_D (flecha roja), y lo que se mide es la proyección de la señal *HT* a lo largo de la dirección del haz (flecha rosa).

Dada la geometría del experimento y la dependencia mencionada de *XMCD* con el ángulo de la magnetización, se define para dominios azul y rojo

$$\theta_D = \cos^{-1} \left(\frac{XMCD_{HT}}{XMCD_{LT}} \right) \quad (4.1)$$

Al analizar la serie de imágenes *XMCD* de la figura Fig. 4.14 se obtienen unos ángulos de desviación de $\theta_{DB} = 58^\circ$ y $\theta_{DR} = 74^\circ$ para los dominios azul y rojo respectivamente, después de que la temperatura aumente hasta la temperatura de transición del superconductor, $T = 90$ K.

Los dominios blancos muestran una señal de *XMCD* integrada a todo el triángulo casi constante en función de la temperatura. La Fig. 4.17-a muestra el detalle de la definición del área a analizar (triángulo verde) o *ROI* (Region Of Interest) para una zona triangular blanca a 53 K, y la evolución con la temperatura de la intensidad del promedio de la señal *XMCD* en esa área

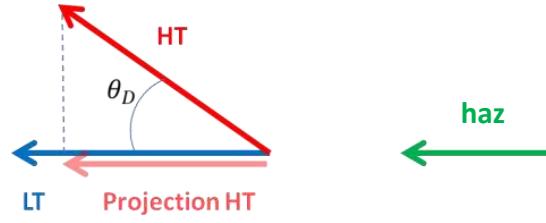


Figura 4.16: Esquema del análisis de la señal $XMCD$ a baja temperatura (LT) y alta temperatura (HT). A LT la magnetización está alineada con el haz. A HT la magnetización rota θ_D y se mide la proyección a lo largo de la dirección del haz.

triangular y en el otro triángulo blanco no marcado (Fig. 4.17-b). En ambos casos el promedio de la señal $XMCD$ es constante y de valor próximo a cero, dentro del error experimental. Es importante resaltar que este es el valor promedio y a nivel local se ve que las cosas son diferentes. En la Fig. 4.14 se puede ver claramente que las zonas originariamente blancas a 53 K muestran la formación de dominios azules y rojos al aumentar la temperatura. El área ocupada por dominios con $XMCD$ positivo (azul) y negativo (rojo) en estas regiones es similar, por tanto, se obtiene el mismo cambio de la magnetización perpendicular a proyección paralela y antiparalela al haz, e igual área de dominios en rojo y en azul recién nucleados, Fig. 4.14-imagen de 90K.

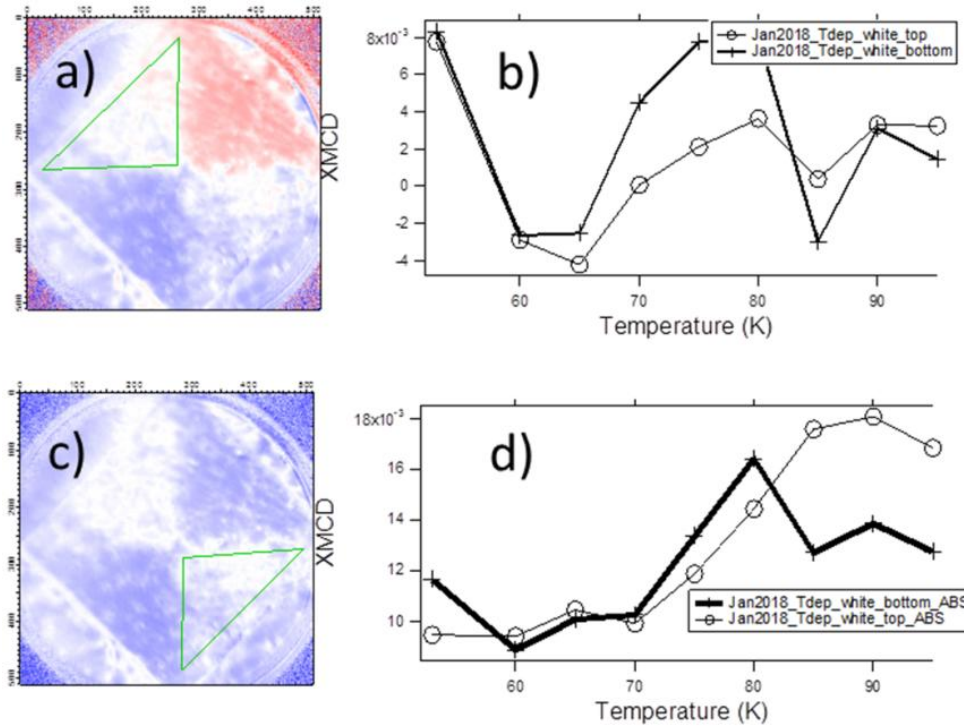


Figura 4.17: (a) Imagen $XMCD$ a 50K para un cuadrado en remanencia. (b) $XMCD$ en función de la temperatura, promedio en los dominios blancos. (c) Imagen $|XMCD|$ y (d) $|XMCD|$ vs temperatura en cada dominio blanco.

Al no poder obtener más información de los dominios blancos usando directamente las imágenes $XMCD$, se procede a analizar su valor absoluto $|XMCD|$. De esta manera los nuevos dominios paralelos y antiparalelos al haz que se nuclean en regiones blancas al aumentar la temperatura, |azul| y |rojo|, se sumarán y contribuirán al valor promedio de $|XMCD|$. La Fig. 4.17-c muestra la imagen del valor absoluto $|XMCD|$ a 53 K, correspondiente a la Fig. 4.17-a. En este caso como toda la señal es positiva la imagen aparece en fragmentos azules o blancos, dependiendo de su intensidad y no hay zonas rojas con señal negativa. Se definen las áreas triangulares blancas como ROI y se calcula la evolución de la señal promedio en esas regiones con la temperatura, obteniendo los valores que se representan en la Fig. 4.17-d. A medida que la temperatura aumenta, el valor absoluto $|XMCD|$ promedio sobre las regiones blancas aumenta, indicando el aumento del ángulo de desviación θ_D de la magnetización resultante de las nuevas componentes paralelas y antiparalelas a lo largo de la dirección de propagación del haz. De la misma manera se puede definir el ángulo de desviación θ_{DW} de los dominios blancos como

$$\theta_{DW} = \sin^{-1} \left(\frac{XMCD_{HT}}{XMCD_{Max}} \right) \quad (4.2)$$

donde $XMCD_{Max}$ es el máximo posible de la señal $XMCD$, que es $|XMCD_{LT}|$ medido como promedio de la intensidad de la señal para los dominios azules y rojos a 53 K. De esta manera se obtiene un ángulo de apertura o desviación sobre la perpendicular en los dominios blancos de $\theta_{DW} = 26^\circ$. Este valor es muy diferente de los ángulos de apertura promedio de los dominios rojos y azules, más adelante se propone un modelo que da una explicación a esta diferencia.

4.3.2. Capa de Py nanoestructurado

4.3.2.1. Estabilidad del patrón magnético con la temperatura

En este apartado se completa el estudio de la estabilidad del patrón magnético al aumentar la temperatura, en muestras con la capa FM nanoestructurada de la misma manera que el $YBCO$. La fabricación de estas muestras con Py nanoestructurado supone una complejidad adicional, pues al nanofabricar las muestras para tener Py solamente en la parte superior de las estructuras de $YBCO$, las propiedades magnéticas del Py se degradan. Por tanto, se modifica el proceso de deposición añadiendo una capa *buffer* intermedia de 3 nm de Pt encima del $YBCO$ para evitar la posible oxidación del Py por parte del $YBCO$. Encima de la capa de 4 nm de Py se deposita el recubrimiento protector de 3 nm de Al. Se escoge un espesor mínimo de 3 nm para la capa protectora de Al con la finalidad de disminuir su absorción de la señal. Las

estructuras se definen posteriormente mediante el proceso de fabricación que ya se ha explicado en la sec. 4.2.

En el estudio de las muestras con Py nanoestructurado se utiliza un espesor de *YBCO* de 250 nm. En estos espesores tan grandes, se segregan en la superficie del *YBCO* precipitados de cobre-oxígeno que pueden llegar a tener micras de tamaño y que dificultan el proceso de deposición y nanofabricación de las capas superiores de metal. Como consecuencia, las estructuras superconductoras muestran entre un 20 y un 40 % de su superficie sin Py con una distribución estocástica. La pérdida de contraste magnético debido a estas zonas no magnéticas se puede compensar promediando imágenes de diversas estructuras del mismo tamaño, de manera similar a como se hace anteriormente para las estructuras más pequeñas. De esta forma cada imagen *XMCD* del estudio en temperatura que se presenta a continuación (Fig. 4.18) se obtiene de un promedio de once imágenes de otros tantos cuadrados de 20 μm de lado, que se toman a la temperatura correspondiente según indica la leyenda.

La primera imagen de la Fig. 4.18 muestra el patrón magnético imprimido por el *YBCO* en la capa superior de Py, que cubre solamente el cuadrado, tras aplicar un pulso de campo perpendicular $H = 1000$ Oe. Al promediar en once cuadrados con los triángulos rojos, azules y blancos, la señal magnética aparece claramente. En las siguientes imágenes *XMCD*, hacia la derecha, se presenta el estudio detallado de la evolución con la temperatura del patrón magnético imprimido a 45 K. Analizando las imágenes en un primer rango de temperatura hasta 90 K, se observa en que los dominios originalmente blancos a

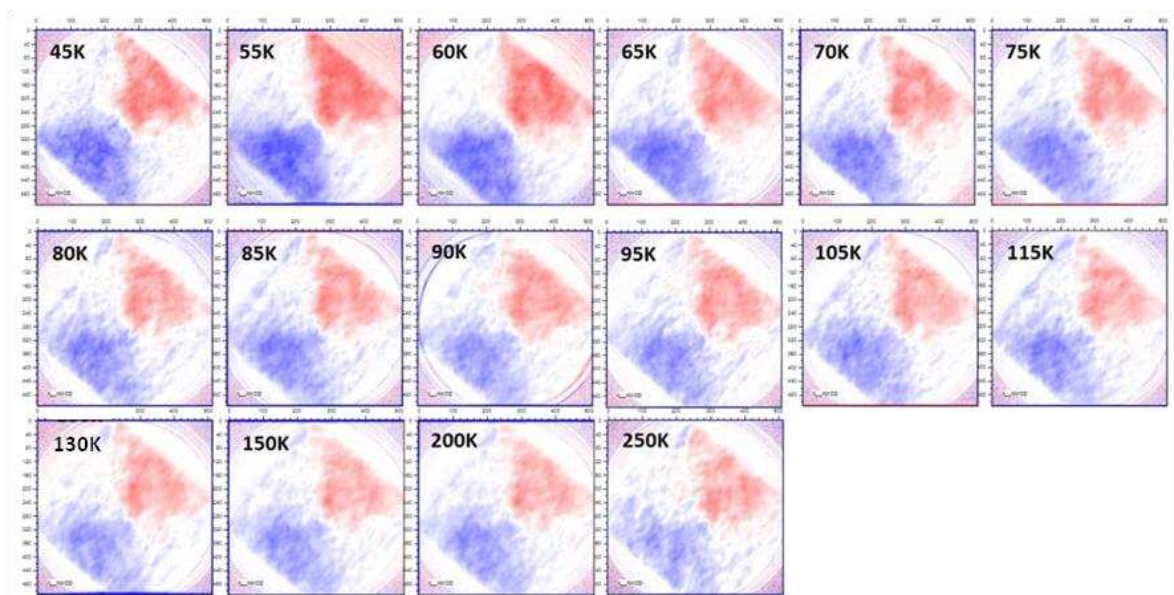


Figura 4.18: Imágenes *XMCD* que muestran la evolución, aumentando la temperatura hasta 250 K, del patrón magnético generado en la primera imagen a 45 K, al aplicar un pulso de campo H perpendicular a la muestra. Cada imagen es promedio de once cuadrados de 20 μm de lado, únicamente hay Py encima del cuadrado.

baja temperatura permanecen blancos a medida que la temperatura aumenta hasta la temperatura de transición superconductora del *YBCO*, 90 K. Este comportamiento, distinto del que se observa en el apartado anterior para el Py continuo, es consecuencia del promediado de once imágenes *XMCD*. Ahora, un dominio blanco promediado a medida que la temperatura aumenta no implica que la magnetización para cada uno de los once cuadrados esté anclada en la dirección original, ortogonal al haz. Efectivamente, las zonas con promedio blanco de las imágenes de la Fig. 4.18 aumentando la temperatura a 90 K, se deben a la nucleación de dominios azules (con proyección paralela) y rojos (proyección antiparalela al haz) que crecen en las zonas inicialmente blancas (Fig. 4.14). Esta nucleación de nuevos dominios es diferente para cada uno de los once cuadrados, por lo que al promediar sus imágenes magnéticas se obtiene un *XMCD* próximo a cero. La evolución del patrón al aumentar la temperatura con el Py nanoestructurado es similar al caso anterior.

Las imágenes *XMCD* de la Fig. 4.18 a temperaturas mayores de 90 K y hasta 250 K, muestran una ligera disminución de la imanación de los dominios paralelos azules y antiparalelos rojos al haz, que se manifiesta en colores menos intensos. Sin embargo, el promedio a once cuadrados muestra claramente el patrón de baja temperatura. De esto se infiere que cada cuadrado tiene la superposición del patrón magnético imprimido a baja temperatura más una cierta componente estocástica, diferente para cada uno de los cuadrados. Lo realmente sorprendente es que la estructura del patrón magnético se conserva, no solamente por encima de la temperatura de transición superconductora del *YBCO*, sino incluso a temperaturas cercanas a la ambiente (250 K).

A continuación se estudia, de forma cuantitativa, de la estabilidad del patrón magnético con la temperatura en las muestras con el Py nanoestructurado junto con el *YBCO*, que corresponde a la serie de imágenes *XMCD* de la Fig. 4.18. En primer lugar, se analiza la dependencia en temperatura de los dominios paralelos y antiparalelos al haz, azules y rojos. La Fig. 4.19 muestra la dependencia al aumentar la temperatura hasta 250 K del valor absoluto de la intensidad *XMCD* para los dominios originalmente azul y rojo, que se obtiene de promediar, a cada temperatura, imágenes de once cuadrados. Una vez corregido el pequeño *offset* de la imanación a baja temperatura, la dependencia en temperatura del valor absoluto $|XMCD|$ que muestran los dominios azul y rojo es la misma y muestra una evolución que se diferencia en dos partes. El valor absoluto $|XMCD|$ comienza a disminuir en 60 K hasta alcanzar una zona plana a 90 K, en torno a la temperatura de transición superconductora T_c . Este descenso acusado del *XMCD* se asigna a la disminución de las supercorrientes que crean el patrón magnético, limitadas por la corriente crítica del *YBCO*, las cuales decrecen al aumentar la temperatura hasta su temperatura de transición $T_c = 90$ K [133].

En la región de temperaturas entre 90 K y 250 K en la Fig. 4.19-a, el

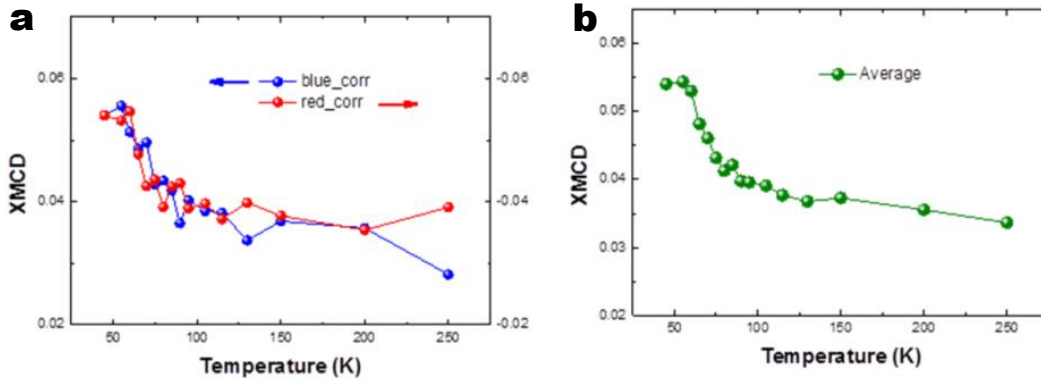


Figura 4.19: (a) Dependencia con la temperatura de $|XMCD|$ de los triángulos rojo y azul definidos a 45 K promediando las imágenes de once cuadrados. (b) Promedio las contribuciones $|XMCD|$ de (a) frente a la temperatura.

$|XMCD|$ permanece casi constante y con un valor diferente de cero, no sólo en valor promedio, sino también se observa que la distribución de dominios magnéticos no cambia en este rango de temperaturas para ninguno de los cuadrados (Fig. 4.18). La estabilidad del patrón magnético entre 90 K y 250 K indica una situación diferente a la rápida variación del $|XMCD|$ que se observa con la temperatura en el rango 50-90 K, y corrobora la asignación de los cambios en este rango a la variación de la corriente crítica con la temperatura de la estructura *SC*. El hecho de que el valor absoluto del $XMCD$ en los triángulos azules y rojos por encima de 90 K no sea cero indica que hay un efecto de memoria. Es decir, la impresión del patrón de dominios magnéticos a baja temperatura tiene un papel determinante en el estado de los dominios del *FM* hasta 250 K cuando el Py está nanoestructurado. La magnetización sigue teniendo una componente en el plano mayoritariamente orientada en la dirección original en la que se imprimió. La nucleación de nuevos dominios no genera una magnetización aleatoria que puede apuntar en cualquier dirección del espacio, sino una que es cercana a la original. De esta forma se mantiene la textura del patrón magnético al aumentar la temperatura. Debido a que no hay ningún cambio aparente entre 100 y 250 K tanto en términos de $|XMCD|$ como en términos de la distribución de dominios es de esperar que a 300 K se observe exactamente lo mismo. Si la persistencia de los triángulos rojos y azules se confirma a temperatura ambiente y se mantiene en el tiempo, resultaría muy interesante para las aplicaciones prácticas de esta metodología de imprimir patrones magnéticos mediante materiales superconductores, por ejemplo en memorias no volátiles.

Analizando la serie de imágenes $XMCD$ de la Fig. 4.18 con el método detallado en la sec. 4.3.1.4, se puede obtener un ángulo de desviación comparando el $XMCD$ obtenido a alta y baja temperatura. Para el caso de tener el Py

nanoestructurado con el *YBCO*, se obtienen unos ángulos de desviación de la imanación sobre la dirección de baja temperatura de $\theta_{DB} = \theta_{DR} = 52^\circ$ para dominios azules y rojos respectivamente. Estos valores son similares a los que se obtienen para los cuadrados de *YBCO* con la capa de Py continua de 4 nm.

Respecto a la estabilidad con la temperatura de los dominios blancos promediados a once estructuras, se puede considerar el $|XMCD|$ de la misma manera que se hace para el cuadrado aislado que se muestra en la Fig. 4.17. En este caso, se debe definir el valor absoluto de estas regiones como la suma del promedio de los cuadrados individuales, es decir:

$$|XMCD_{average}| = \sum_i |XMCD_i| \quad (4.3)$$

donde el índice i corresponde a cada estructura cuadrada, y va de 1 a 11. Como en el caso del Py continuo, se observa un aumento de $|XMCD_{average}|$ con la temperatura, que confirma el escenario en el que la dirección de magnetización de los dominios blancos se aleja (en promedio) de la posición original perpendicular, al aparecer zonas con proyección paralela y antiparalela al haz (Fig. 4.20). Analizando las imágenes *XMCD* con la temperatura de acuerdo a la ecuación 4.2 se obtiene un ángulo de desviación para la magnetización de los triángulos que eran blancos a 50 K, de $\theta_{DW} = 23^\circ$. Se obtiene, de nuevo, valores diferentes del ángulo de desviación para los dominios rojos y azules (52°), y blancos (23°), que se va a racionalizar con un modelo. Los valores de los ángulos de desviación promedio con el Py nanoestructurado son similares, pero menores, a los obtenidos para los cuadrados de *YBCO* con la capa de Py continua de 4 nm (58° , 74° y 26°), lo que parece indicar que al tener el Py nanoestructurado con el *YBCO*, no hay influencia de Py fuera del *YBCO*, y por tanto, el patrón magnético podría resultar más estable.

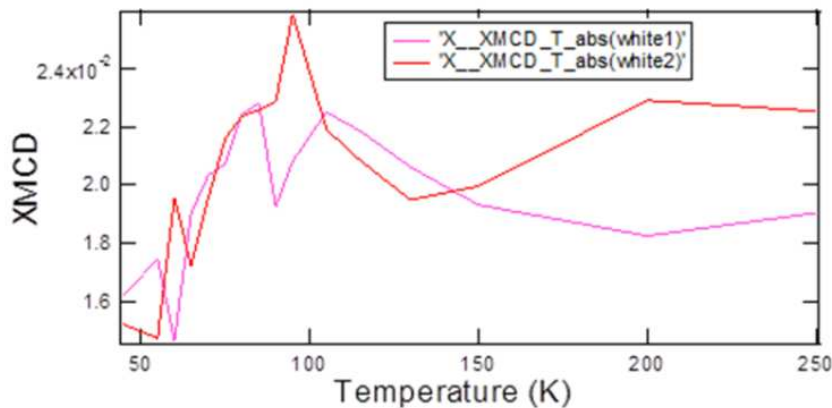


Figura 4.20: Señal $|XMCD|$ de las dos regiones triangulares blancas definidas a 50 K en función de la temperatura. El $XMCD$ de cada temperatura es promedio de once cuadrados.

4.3.2.2. Estabilidad del patrón magnético a temperatura ambiente

Para estudiar la permanencia del patrón magnético a temperatura ambiente se presenta una caracterización de imágenes *XMCD* a 300 K que se realiza tres semanas después de las medidas de las Fig. 4.18, Fig. 4.19 y Fig. 4.20 sobre la misma muestra. La Fig. 4.21-a corresponde al promedio de imágenes de *XMCD* de once cuadrados, para aumentar y homogeneizar la señal magnética y demuestra que el patrón imprimido a baja temperatura sobrevive a temperatura ambiente y por un tiempo mayor de tres semanas. Para obtener más información de los dominios blancos con magnetización perpendicular y conocer el origen de estas diferencias se mide *XMCD* de los cuadrados para un segundo ánguloacimutal $\phi = 90^\circ$. El acimut de 0° corresponde a la mayoría de las medidas que se presentan en este capítulo, por ejemplo, en la Fig. 4.17. Una rotación acimutal de 90° de la muestra permite alinear con el haz los dominios magnéticos que eran blancos a 0° , de manera que la señal *XMCD* ahora sí va a ser sensible al magnetismo de estas zonas. En la Fig. 4.21-b el giro de 90° de la muestra evidencia que todo el patrón imprimido a baja temperatura sobrevive a temperatura ambiente, y que en promedio los dominios blancos conservan la magnetización perpendicular.

Comparando las dos imágenes de la Fig. 4.21 se observa como después de cambiar el ángulo acimutal, las regiones *a* y *c* cambian de casi $XMCD = 0$ (blanco) a positivo (azul) y negativo (rojo) respectivamente, mientras que lo contrario sucede con los dominios *b* y *d*, que pasan a tener $XMCD$ nulo por tener imanación perpendicular al haz. A partir de estas dos imágenes de 512×512 píxel se puede calcular el ángulo de la magnetización en cada píxel. El resultado de la distribución espacial de la dirección de magnetización se presenta en la Fig. 4.22 con el código de colores que se muestra en la leyenda para ángulos de 0 - 360° . En la figura está completamente definido el ángulo de

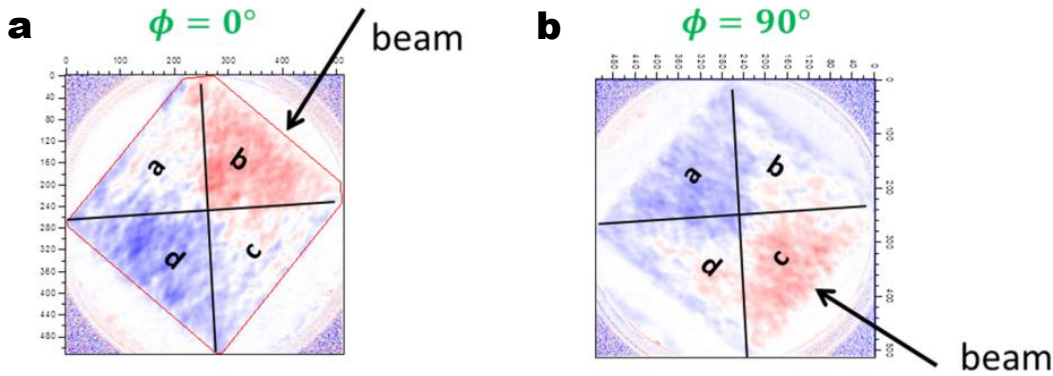


Figura 4.21: *XMCD* promedio de once cuadrados a temperatura ambiente para dos ángulos acimutales ϕ de (a) 0° y (b) 90° . Las etiquetas *a*–*d* marcan los mismos dominios con forma triangular, la flecha indica la dirección de incidencia del haz en la muestra.

la magnetización, que se incluye también como un campo vectorial para mayor claridad.

El mapa 2D de la distribución angular de la magnetización que se muestra en la Fig. 4.22 aporta mucha información importante. Por un lado, corrobora que el patrón magnético que se imprime a baja temperatura por los campos magnéticos que crean las supercorrientes del *YBCO* en la estructura cuadrada sobrevive, en gran medida, a temperatura ambiente, y es robusto en el tiempo incluso después de tres semanas. Por otro, permite calcular la distribución angular de la magnetización dentro del mismo dominio magnético triangular y comparar con el análisis previo del ángulo de desviación.

En la Fig. 4.23 se muestra un esquema de la evolución de la magnetización con la temperatura que se ha visto hasta ahora. La magnetización, inicialmente orientada mayoritariamente a lo largo de las flechas negras, se reorienta al aumentar la temperatura un determinado ángulo que está comprendido en un cono de ángulo θ_D . El *desalineamiento* está iniciado en las diagonales del cuadrado, donde confluyen dominios con magnetización en direcciones ortogonales, configuración que deja de ser estable al no estar los dominios sustentados por el campo del *SC* por encima de T_c . Por tanto, las zonas cercanas a la frontera de dos dominios triangulares son las que preferentemente cambian su orientación a medida que aumenta su temperatura.

Es posible utilizar los datos de la Fig. 4.22 para calcular el ángulo de desviación promedio de la magnetización, mismo ángulo calculado de la dependencia en temperatura del *XMCD* para los dominios blanco, azul y rojo. Teniendo en cuenta la orientación de la magnetización en cada píxel, en la Fig. 4.24 se detalla la distribución de ángulos para cada uno de los cuatro triángulos en los

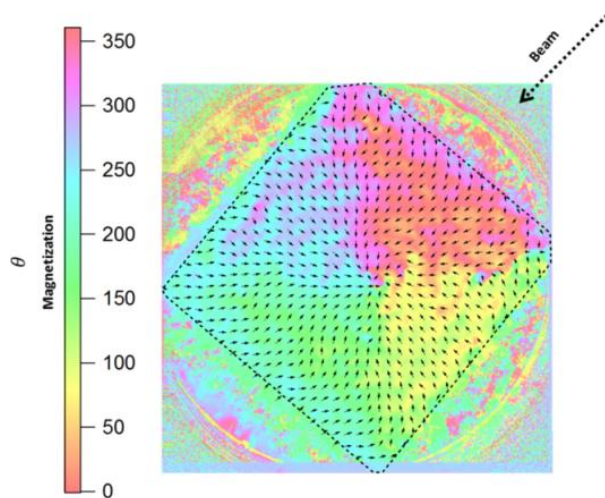


Figura 4.22: Mapa 2D para la orientación de magnetización en el *Py* a 300 K tres semanas después de imprimir el patrón magnético a 45 K, obtenido a partir de los datos representados en la Fig. 4.21.

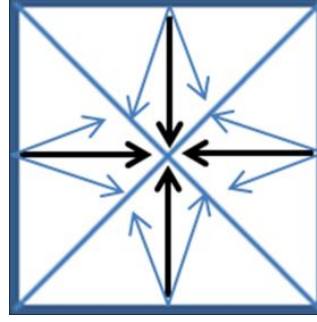


Figura 4.23: Desviación de la magnetización cercana a las fronteras de los dominios triangulares a medida que aumenta la temperatura, respecto a la magnetización original de baja temperatura (flechas negras).

que se divide el cuadrado. Para mayor claridad, se selecciona, para la dirección de la magnetización, una escala de color diferente en cada triángulo, como se indica en las imágenes superiores. En la gráfica de la Fig. 4.24 se observa que los máximos de orientación de la magnetización en cada región triangular se centran aproximadamente en 0° , 90° , 180° y 270° con respecto a la dirección del haz incidente, que son exactamente las orientaciones del patrón magnético que se imprime a baja temperatura. Al ajustar las distribuciones de ángulos para los cuatro dominios con una distribución gaussiana, resultan los centros a $(0.8 \pm 0.2)^\circ$, $(96.2 \pm 0.2)^\circ$, $(174.4 \pm 0.2)^\circ$ y $(264.9 \pm 0.2)^\circ$, y una anchura a mitad de altura ($FWHM$) de $(46 \pm 4)^\circ$, lo que significa una desviación media $\sigma = (23 \pm 2)^\circ$. Existe, por tanto, una pequeña desviación de la magnetización respecto a las posiciones impresas a baja temperatura. Para comparar con los valores del ángulo de desviación con el Py continuo, se puede calcular el cambio relativo en $XMCD$ entre baja temperatura (totalmente alineado) y temperatura ambiente (desviado) con la proyección de la magnetización respecto al haz, de la forma explicada en la Fig. 4.16, obteniendo el ángulo de desviación promedio como:

$$\cos\theta_D = \left| \frac{\sum_i N_i \cos\theta_i}{\sum_i N_i} \right| \quad (4.4)$$

para los dominios originalmente azul/rojo (verde/azul en la Fig. 4.24) y según:

$$\sin\theta_D = \left| \frac{\sum_i N_i \sin\theta_i}{\sum_i N_i} \right| \quad (4.5)$$

para los dominios inicialmente blancos (marrón/amarillo en la Fig. 4.24), donde N_i es el número de puntos con ángulo de magnetización θ_i . Haciendo uso de

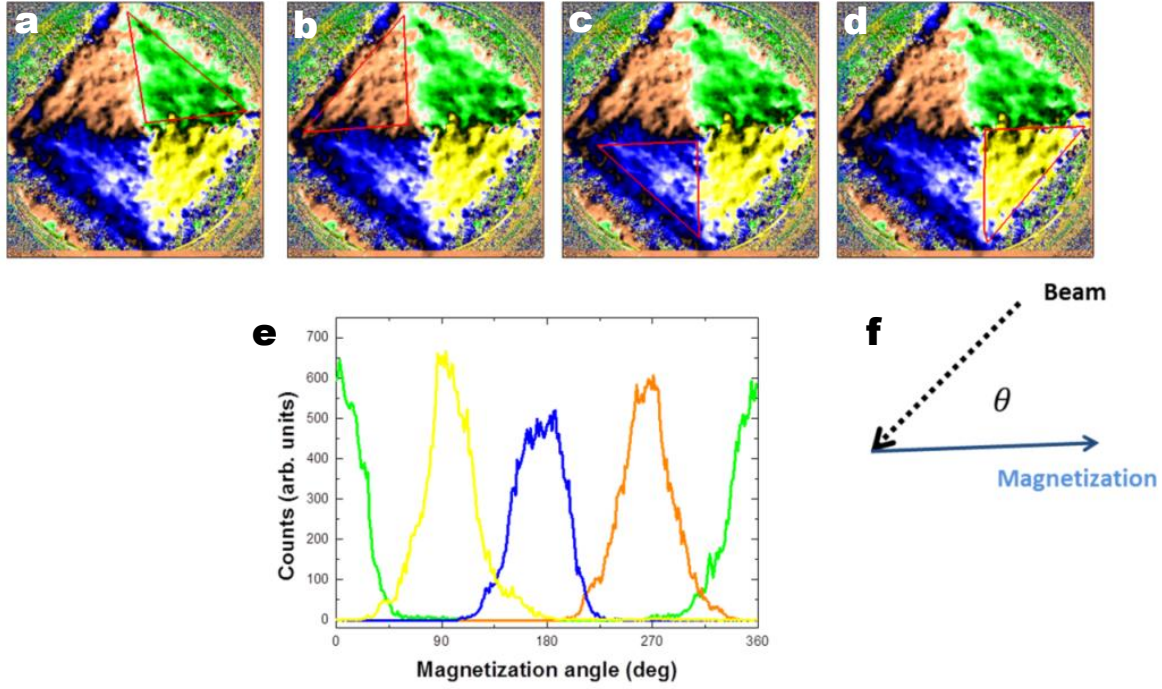


Figura 4.24: (Arriba) Mapa bidimensional de la dirección de magnetización en RT que muestra el área que se utiliza para obtener los histogramas que se muestran debajo.

estas expresiones se obtiene $\theta_{DG} = (23 \pm 3)^\circ$, $\theta_{DB} = (26 \pm 3)^\circ$, $\theta_{DY} = (21 \pm 3)^\circ$ y $\theta_{DO} = (23 \pm 3)^\circ$ que en promedio conduce a $\langle \theta_D \rangle = 23^\circ$. Se obtienen aquí valores para θ_D muy similares para los cuatro dominios, a diferencia de lo que se observa en el análisis de los datos de *XMCD* frente a la temperatura, que presenta valores muy diferentes para los ángulos de desviación correspondientes a las regiones blancas y azul y roja, tanto en el caso del Py continuo como nanoestructurado. Esta diferencia se analiza en el siguiente apartado con ayuda de un modelo gaussiano para la desviación angular.

Se puede hacer un segundo cálculo de los ángulos de desviación de la magnetización respecto del patrón ideal a baja temperatura, utilizando directamente la información angular del mapa 2D de la Fig. 4.24 que se obtiene de las medidas de *XMCD* para dos ángulos acimutales diferentes. Hasta ahora se obtiene el ángulo de desviación del cambio de *XMCD* como consecuencia de variar la proyección sobre el haz, pero ahora, al tener los datos detallados en toda la estructura de los ángulos de la Fig. 4.24, se puede calcular el promedio directamente del ángulo de desviación.

$$\theta_D = \left| \frac{\sum_i N_i |\theta_i - \theta_c|}{\sum_i N_i} \right| \quad (4.6)$$

Este es el promedio del ángulo de desviación, donde θ_c es el ángulo máximo. Siguiendo este procedimiento, se obtiene $\theta_{DG} = (18 \pm 4)^\circ$, $\theta_{DB} = (19 \pm 4)^\circ$,

	θ_{DG}	θ_{DB}	θ_{DR}	θ_{DW}	θ_{DY}	θ_{DO}
<i>Py continuo(50-90K)</i>	-	58°	74°	26°	-	-
<i>Py nanoest. (50-250K)</i>	-	52°	52°	23°	-	-
<i>Py nanoest. (300K)</i>	23°	26°	-	-	21°	23°
<i>Py nanoest. (300K) media de θ</i>	18°	19°	-	-	16°	18°

Tabla 4.1: Resumen de los ángulos de desviación.

$\theta_{DY} = (16 \pm 4)^\circ$ y $\theta_{DO} = (18 \pm 4)^\circ$, que al hacer la media corresponde con un ángulo total de desviación de $\langle \theta_D \rangle = 18^\circ$.

4.3.2.3. Modelo para la estabilidad con la temperatura de la magnetización

A continuación se investiga la gran diferencia en los ángulos de desviación correspondientes a las regiones blancas y azul y roja, que se encuentran tanto en el caso del Py continuo como nanoestructurado (Tab. 4.1). Se diseña un modelo para considerar los ángulos de desviación de la magnetización θ_D , θ_{DB} y θ_{DR} al aumentar la temperatura hasta 300 K, y analizar la permanencia del patrón a temperatura ambiente y tiempos largos. El modelo se basa en los siguientes resultados experimentales:

- El ángulo de la magnetización en función de la temperatura se puede aproximar por una distribución gaussiana.
- Con el aumento de temperatura, en los dominios blancos de los cuadrados individuales (inicialmente perpendiculares al haz), se produce una nucleación de nuevos dominios con proyección de su magnetización a lo largo de la dirección de propagación del haz, bien paralelos o antiparalelos.

En la Fig. 4.25 se describe el modelo para el cambio $XMCD$ en función de la temperatura. Este modelo consiste en una distribución gaussiana de ángulos de la magnetización, con $FWHM = 45^\circ$ ($\sigma \approx 22.5^\circ$) para los cuatro dominios triangulares con respecto a la posición original ideal que se imprime a baja temperatura, a medida que T aumenta por encima de la temperatura de transición superconductora. A partir de la distribución gaussiana de ángulos, y considerando la contribución del $XMCD$ (en el caso de los dominios azul y rojo) y del $|XMCD|$ (en el caso de dominios blancos) como ya se ha explicado, se calcula el ángulo de desviación (basado en el cambio $XMCD$ entre baja y alta temperatura) para los diferentes dominios. De esta manera se obtienen unos ángulos promedio de desviación según las ecuaciones 4.2 y 4.3 de $\theta_{DB} = \theta_{DR} = 22^\circ$ para los dominios azul y rojo, y $\theta_{DW} = 17^\circ$ para los dominios blancos. Estos valores están de acuerdo con los que se encuentran experimentalmente



Figura 4.25: Descripción esquemática de la orientación de la magnetización en los dominios a (a) baja temperatura (LT) y a alta temperatura (HT) para los dominios originalmente (b) azules y (c) blancos.

a 300 K evaluando la distribución angular de la magnetización de la Fig. 4.22, tanto en su proyección como en el ángulo promedio, con valores similares para los triángulos azul y rojo, y los dos blancos, de 23° y 18° respectivamente (Tab. 4.1).

El modelo no tiene en cuenta, sin embargo, la mayor desviación de la imanación en los dominios inicialmente rojos y azules al aumentar la temperatura, con ángulos muy diferentes respecto de los dominios blancos ortogonales (Tab. 4.1). Se considera entonces las pequeñas áreas cercanas a las diagonales del cuadrado de los dominios rojos y azules en las que la proyección de la magnetización se ha invertido, y se propone la existencia de un 10 % de los dominios nucleados con proyección opuesta a la de la magnetización a baja temperatura. Estos dominios también siguen la distribución gaussiana, como se indica en la Fig. 4.25-b. Con el modelo modificado, se obtienen unos ángulos promedio de desviación de $\theta_{DB} = \theta_{DR} = 50^\circ$ para los dominios azul y rojo, respectivamente y $\theta_{DW} = 17^\circ$ para dominios blancos, que ahora sí tienen en cuenta de los resultados experimentales, con valores de $\theta_{DB} = \theta_{DR} = 52^\circ$, $\theta_{DW} = (23^\circ \pm 4)^\circ$ para el Py nanoestructurado.

El modelo indica, por tanto, que las grandes diferencias entre los valores de θ_{DB} , θ_{DR} y θ_{DW} se deben a la nucleación de dominios cuya magnetización tiene una proyección antiparalela a la proyección original de la magnetización a baja temperatura. Debido a la geometría del experimento, los dominios blancos inicialmente ortogonales al haz muestran el mismo θ_{DW} independientemente de si existe o no nucleación de nuevos dominios con la proyección de la magnetización opuesta a la de los dominios originales. Esto se debe a que los nuevos dominios tienen una distribución simétrica respecto a la perpendicular al haz, y su proyección a lo largo de la dirección del haz se cancela. Por último, en este modelo, el ángulo que se calcula para dominios blancos basado en el cambio del valor absoluto $|XMCD|$ y el ángulo basado en la rotación promedio de cada posición aporta valores similares. El primero se obtiene de la ecuación análoga

a la ecuación 4.3:

$$\theta_{DW} = \left| \frac{\sum_i N_i |\sin(\theta_c - \theta_i)|}{\sum_i N_i} \right| \quad (4.7)$$

mientras que la segunda viene de la ecuación 4.6. Dado que en la distribución gaussiana la mayoría de los ángulos de desviación son pequeños, se puede aproximar $\sin(\theta_c - \theta_i) \sim (\theta_c - \theta_i)$ y ambas formas de calcular θ_{DW} dan el mismo valor de ángulo con una precisión menor de un grado. La configuración ortogonal de los dominios originalmente blancos significa que el ángulo θ_{DW} que se obtiene en ellos es un valor más fiable que los inicialmente paralelos o antiparalelos al haz. Es, por tanto, el parámetro clave para analizar la supervivencia de los patrones imprimidos a bajas temperaturas, y permite comprender el comportamiento del sistema sin realizar las medidas a varios ángulos acimutales. Además, como se ha visto, el valor θ_{DW} puede calcularse de manera sencilla del cambio de $|XMCD|$ con la temperatura utilizando la ecuación 4.2. Esta conclusión del modelo se puede apreciar en los datos experimentales, siendo el valor θ_{DW} el que se mantiene más homogéneo en todas las medidas realizadas.

4.4. Nanoestructuras de YBCO-FM con imanación perpendicular al plano

En este segundo apartado se estudia el patrón magnético creado por las microestructuras de *YBCO* pero con una capa ferromagnética con eje fácil de imanación perpendicular al plano de la muestra, formada por una multicapa Co-Pt. Como en el apartado anterior se va a utilizar el *YBCO* en el *PEEM* como mecanismo de contraste magnético para explorar la influencia de los campos dipolares creados por una estructura superconductora cuadrada de *YBCO* de espesor 130 nm y tamaño lateral de 13 μm . Sobre esta estructura se crece una multicapa o superred ferromagnética continua de cinco repeticiones de Co (0.6 nm) \ Pt (1 nm).

Como se ha observado, el *XMCD* es proporcional a la proyección de la magnetización a lo largo de la dirección de propagación del haz, y se utiliza principalmente para la investigación de compuestos magnéticos con magnetización en el plano. Sin embargo, la geometría experimental en el *PEEM* permite la caracterización de materiales magnéticos con magnetización fuera del plano porque la muestra está colocada con un ángulo de incidencia de la radiación con respecto a la superficie de la muestra de 16° . Esto significa que, para un sistema magnetizado fuera del plano puro, el *XMCD* que se mide es aproximadamente el 30 % del total, es decir, $\sin(16^\circ) = 0,27$. De esta manera se

presenta a continuación la caracterización con *XMCD – PEEM* en el borde Co $L_{2,3}$ del mismo sistema de microestructuras cuadradas de *YBCO* recubierto por una multicapa Co-Pt continua, que se realiza también en el sincrotrón BESSY del *Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie*. El trabajo experimental presentado en este apartado se realiza en colaboración con la Dra. Anke Sander, del grupo del profesor Javier Villegas en *CNRS/THALES* y del Dr. Sergio Valencia en *HZB-BESSY*.

4.4.1. Dominios magnéticos sin superconductividad

Primeramente se caracteriza la respuesta magnética del sistema *YBCO/Co-Pt* sin los efectos de las supercorrientes. En la Fig. 4.26 se presentan los ciclos de histéresis de la multicapa de cinco repeticiones de Co (0.6 nm) \ Pt (1 nm) con campo magnético aplicado perpendicular al plano de la muestra, a 300 K y 10 K. Se observa el eje magnético fácil en la dirección perpendicular, y el campo coercitivo aumenta desde los 30 Oe a temperatura ambiente hasta los 480 Oe a 10 K.

Ahora se analiza el recubrimiento de las estructuras de *YBCO* con la multicapa Co-Pt. En la Fig. 4.27-a se muestra la imagen de *XAS* en el borde del Co de una estructura híbrida formada por un cuadrado de 13 μm de *YBCO* cubierta con la capa magnética de Co-Pt. El detalle del borde de absorción $L_{2,3}$ se observa en la Fig. 4.27-b, medido en la región interior del cuadrado de *YBCO* en rojo y en la exterior al cuadrado, donde no hay *YBCO* en negro. Se observa que el espectro de absorción es idéntico, confirmando por tanto la continuidad de la capa sobre los cuadrados de *YBCO* y el espacio entre ellos.

La caracterización magnética de la misma estructura cuadrada de *YBCO* cubierto por la multicapa Co-Pt se muestra en la Fig. 4.28. El panel (a) es la imagen de *XMCD* tomada en el *PEEM* a una temperatura de 50 K después

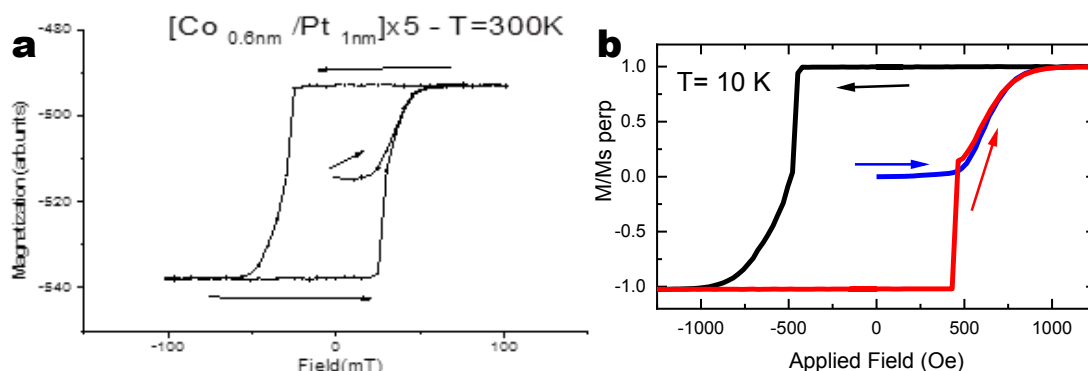


Figura 4.26: Ciclos de histéresis que se obtienen para el campo magnético perpendicular al plano en una multicapa Co-Pt, como la que recubre las estructuras de *YBCO*, a 300 K (izquierda) y 10 K (derecha).

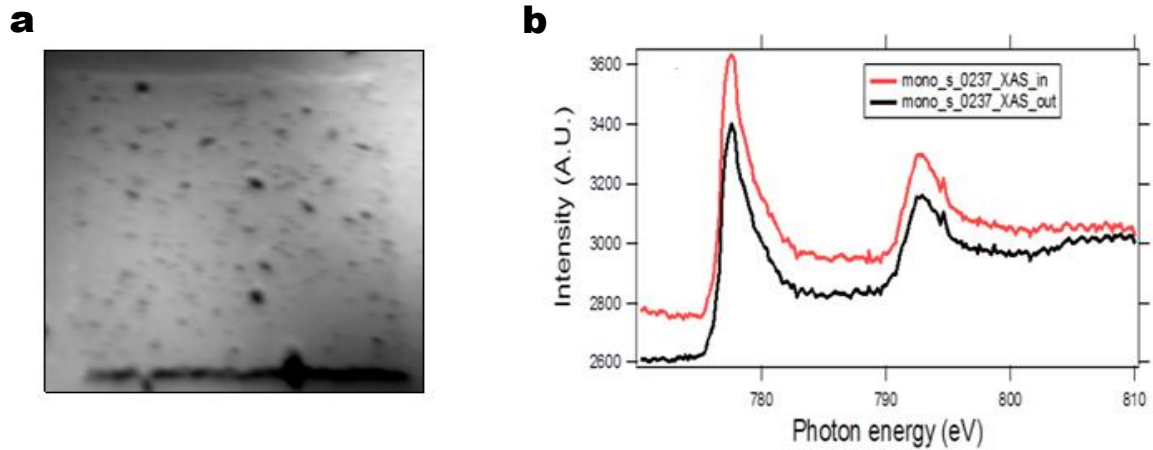


Figura 4.27: (a) Imagen de XAS en el borde $Co L_{2,3}$ de un cuadrado de $YBCO$ de $13 \mu m$ de lado recubierto por una multicapa continua de $Co-Pt$. (b) Detalle de los espectros de absorción tomados en la imagen (a) encima del cuadrado de $YBCO$ (rojo) y en el exterior (negro).

de someter a la muestra a un enfriamiento sin campo ZFC . Se observa el patrón magnético de la muestra virgen, con zonas orientadas según el eje $+z$ en azul y dominios orientados según el eje $-z$ en rojo, como especifica el código de colores de la leyenda (Fig. 4.28-a). Este patrón es típico de materiales con la magnetización perpendicular, y coincide con la imagen magnética obtenida por MFM a temperatura ambiente en una estructura similar (Fig. 4.28-b).

A continuación se estudia la variación del patrón magnético de la capa de $Co-Pt$ con el campo perpendicular en el cuadrado de $YBCO$ de $13 \mu m$ de lado. Para ello se realiza una serie de imágenes $XMCD$ medidas en remanencia, siguiendo un ciclo de histéresis con el campo perpendicular al plano de la

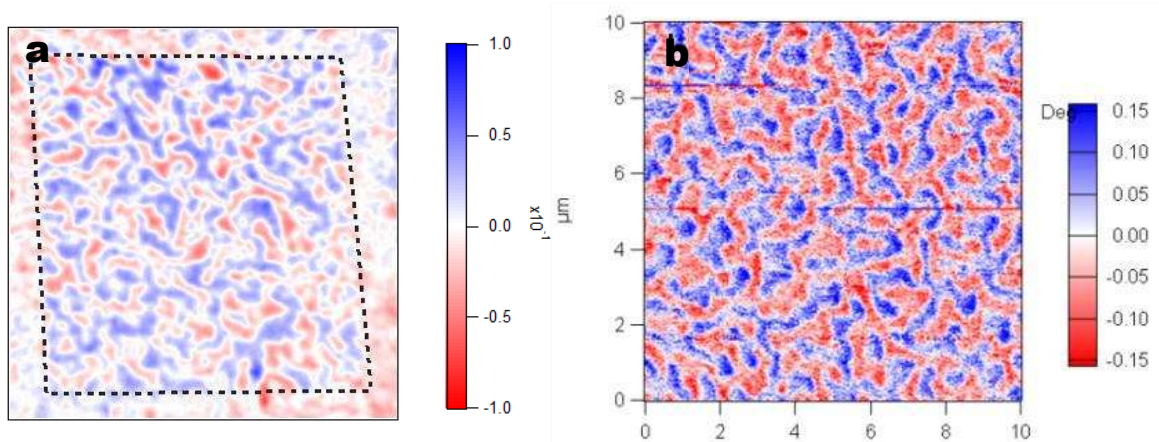


Figura 4.28: (a) Estructura de dominios magnéticos tras ZFC medida por $XMCD$ en el borde $Co L_{2,3}$ encima de un cuadrado de $YBCO$ de $13 \mu m$ de lado marcado por línea discontinua. (b) Dominios magnéticos medidos por MFM en una estructura similar a 300 K.

muestra entre ± 1000 Oe y sin superconductividad en el *YBCO*. La Fig. 4.29 muestra una selección de imágenes de *XMCD* obtenidas aplicando los campos magnéticos que se detallan en cada una, a temperatura de 120 K. El campo evoluciona de izquierda a derecha en la primera fila, y continúa de la misma manera en la segunda fila. Las imágenes se seleccionan para mostrar la estructura de los dominios magnéticos en saturación y a los valores de campo H en los que se nuclean dominios con la magnetización invertida. Al ser las medidas en remanencia estos valores no son en rigor el campo coercitivo, pero se los puede llamar “campo coercitivo efectivo” H_c porque dan una idea del campo necesario para invertir la imanación en una determinada zona de la muestra. La primera imagen de la Fig. 4.29, con $H_{\text{rem}} = 600$ Oe, tiene un contraste homogéneo de *XMCD* azul, y por lo tanto la magnetización está saturada en la dirección $+z$. La disminución de H_{rem} hasta -350 Oe (Fig. 4.29-b), provoca la nucleación de dominios con la magnetización en la dirección opuesta $-z$ (color rojo). Se observa un aumento de los dominios rojos a -450 Oe (Fig. 4.29-c), hasta saturación negativa para valores de $H_{\text{rem}} = -550$ Oe en (d). Se observa un comportamiento similar al aumentar el campo magnético en la otra rama del ciclo. Aumentando el campo desde saturación negativa se inicia la formación de dominios azules en 350 Oe (Fig. 4.29-e). En las imágenes (f), (g) y

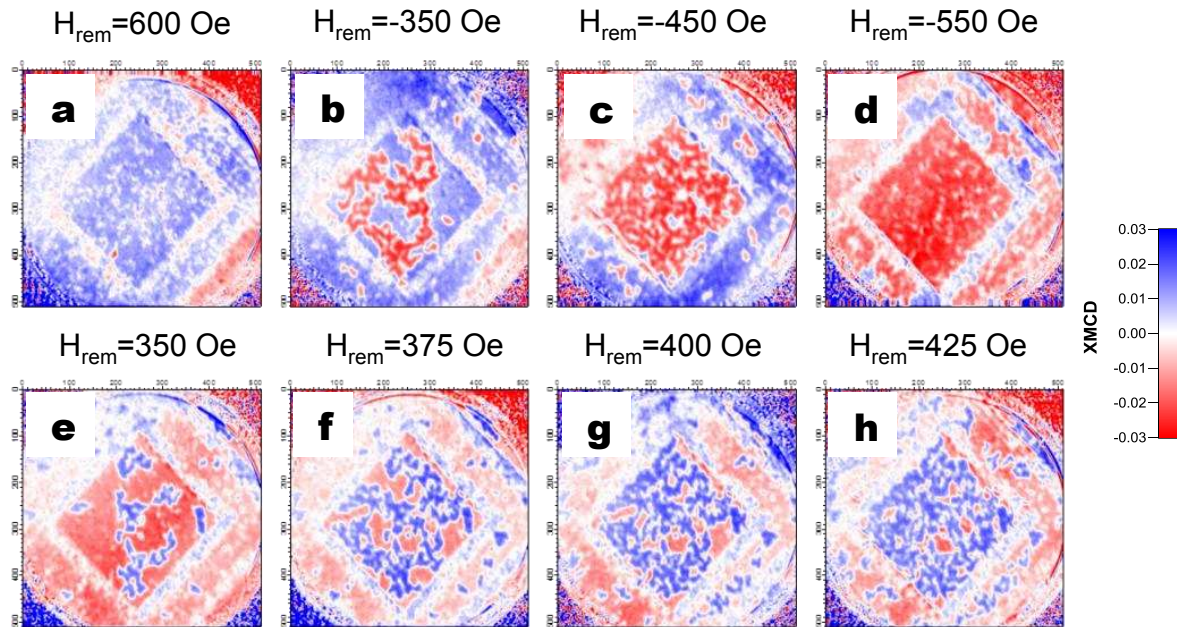


Figura 4.29: Imágenes seleccionadas de *XMCD* obtenidas en remanencia a 120 K después de aplicar pulsos de campo magnético perpendicular H del valor que se especifica en la leyenda, siguiendo el ciclo de histéresis, de 600 a -600 Oe en la fila de arriba, y de -600 a 600 Oe en la fila de abajo. La nucleación y el crecimiento de los dominios magnéticos se distribuyen aleatoriamente en la capa Co-Pt encima del cuadrado de *YBCO*. El código de colores *XMCD* se indica a la derecha

(h) se presenta el detalle del proceso de aumento de la magnetización en la dirección positiva del campo para $H_{\text{rem}} = 375, 400$ y 425 Oe respectivamente. Considerando todas las imágenes cercanas a los campos coercitivos efectivos H_c se observa que la nucleación y el crecimiento de los dominios magnéticos con signo opuesto es estocástico, es decir, no hay regiones privilegiadas encima del cuadrado de *YBCO*, cuando no es superconductor.

4.4.2. Efecto de la superconductividad

Una vez que se caracteriza el comportamiento magnético de la capa de Co-Pt encima de la estructura cuadrada de *YBCO* sin los efectos superconductores, a continuación se analiza la influencia de las supercorrientes de apantallamiento. La Fig. 4.30 presenta las imágenes del patrón magnético inducido en la capa de Co-Pt en la misma estructura cuadrada de $13\ \mu\text{m}$ a una temperatura de $50\ \text{K}$, con el *YBCO* superconductor. Para poder comparar con la figura anterior se sigue la misma metodología en la medida y en la presentación de los resultados. En la primera fila se presentan las imágenes correspondientes al cambio de campo perpendicular desde $H_{\text{rem}} = 1000$ Oe hasta $H_{\text{rem}} = -1000$ Oe, y en la segunda fila la rama contraria, desde campo negativo hasta positivo. La imagen (a) corresponde al estado saturado positivo, con toda la multicapa de Co-Pt en azul para $H_{\text{rem}} = 1000$ Oe. Las imágenes (b) y (c) muestran la nucleación de dominios de orientación opuesta, rojos, a campos de $H_{\text{rem}} = -450$ y -500 Oe. La imagen (d) enseña el estado saturado negativo, con toda la muestra en rojo, correspondiendo al *XMCD* negativo para $H_{\text{rem}} = -1000$ Oe. En la segunda fila de imágenes de la Fig. 4.30, se presenta el detalle de nucleación de los dominios al revertir la magnetización cuando se cambia el campo desde $H_{\text{rem}} = -1000$ hasta $H_{\text{rem}} = +1000$ Oe. Los campos seleccionados corresponden a $450, 475, 500$, y 550 Oe para las imágenes (e), (f), (g) y (h) respectivamente. Analizando las imágenes de la nucleación de dominios para la inversión de la magnetización, se observan varias diferencias al tener el *YBCO* en estado superconductor. Los valores de los campos coercitivos efectivos son mayores ahora, se comienzan a nuclear dominios invertidos a 450 Oe a $50\ \text{K}$ frente a los 375 Oe a $120\ \text{K}$. Además, las imágenes *XMCD* muestran que los nuevos dominios con el *YBCO* superconductor aparecen preferentemente cerca de los bordes del cuadrado, como se aprecia claramente en las imágenes (b) y (e). La región central permanece sin invertir hasta campos mucho mayores que el campo coercitivo efectivo H_c , imágenes (c) y (h).

Para cuantificar la distribución espacial del campo coercitivo y el efecto del cuadrado de *YBCO*, se puede utilizar cada pixel de las imágenes *XMCD* de las Fig. 4.29 y Fig. 4.30 para trazar un mapeo del campo H_c en la superficie de la muestra con el *YBCO* en estado metálico a $120\ \text{K}$ y superconductor a $50\ \text{K}$. Ambos mapas se calculan mediante el uso de *macros* en el software *IGOR*,

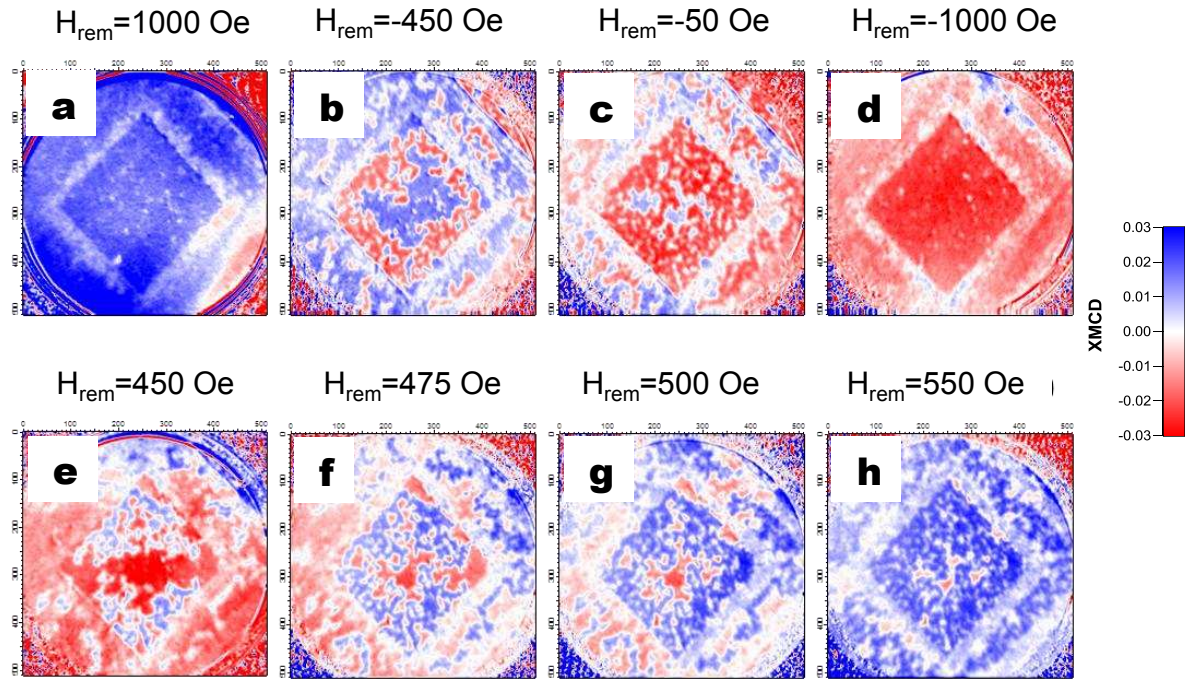


Figura 4.30: Imágenes seleccionadas de *XMCD* obtenidas en remanencia a 50 K después de aplicar pulsos de campo magnético perpendicular H_{rem} del valor especificado en la leyenda, siguiendo el ciclo de histéresis, de 1000 a -1000 Oe en la fila de arriba, y de -1000 a 1000 Oe en la fila de abajo. La nucleación y el crecimiento de los dominios magnéticos comienzan cerca de los bordes del cuadrado de *YBCO* y se propagan hacia su centro para campos mayores. El código de colores *XMCD* se indica a la derecha.

considerando el conjunto completo de datos de *XMCD* vs H . Con ellos se interpola el ciclo de histéresis y se calculan los campos coercitivos efectivos en la rama positiva y negativa. Posteriormente, se calcula para cada píxel de la imagen el valor promedio $H_c = (H_{c2} - H_{c1})/2$, de manera que el signo negativo tiene en cuenta el promedio para los campos negativos. Los mapas calculados se presentan en la Fig. 4.31-a-b, con el código de color especificado en la leyenda. El panel (a) muestra el comportamiento magnético de la multicapa de Co-Pt con el *YBCO* en estado metálico, a la temperatura de 120 K. Se observa que el campo coercitivo efectivo es homogéneo en la superficie del cuadrado. La variación del campo con la posición se puede visualizar mejor trazando un perfil de campo H_c pasando por el centro, a lo largo de la línea marcada en la imagen. En el panel (c) en rojo se presenta la dependencia de H_c con la posición mostrando unos datos constantes dentro del error experimental.

Al realizar el mismo análisis con el *YBCO* en estado superconductor a 50 K, se observan diferencias en el mapeo de H_c de la Fig. 4.31-b y el perfil de H_c a lo largo de la línea central marcada en la figura, que se representa con los puntos azules en la Fig. 4.31-c. En el panel (b) se observa un patrón de campos

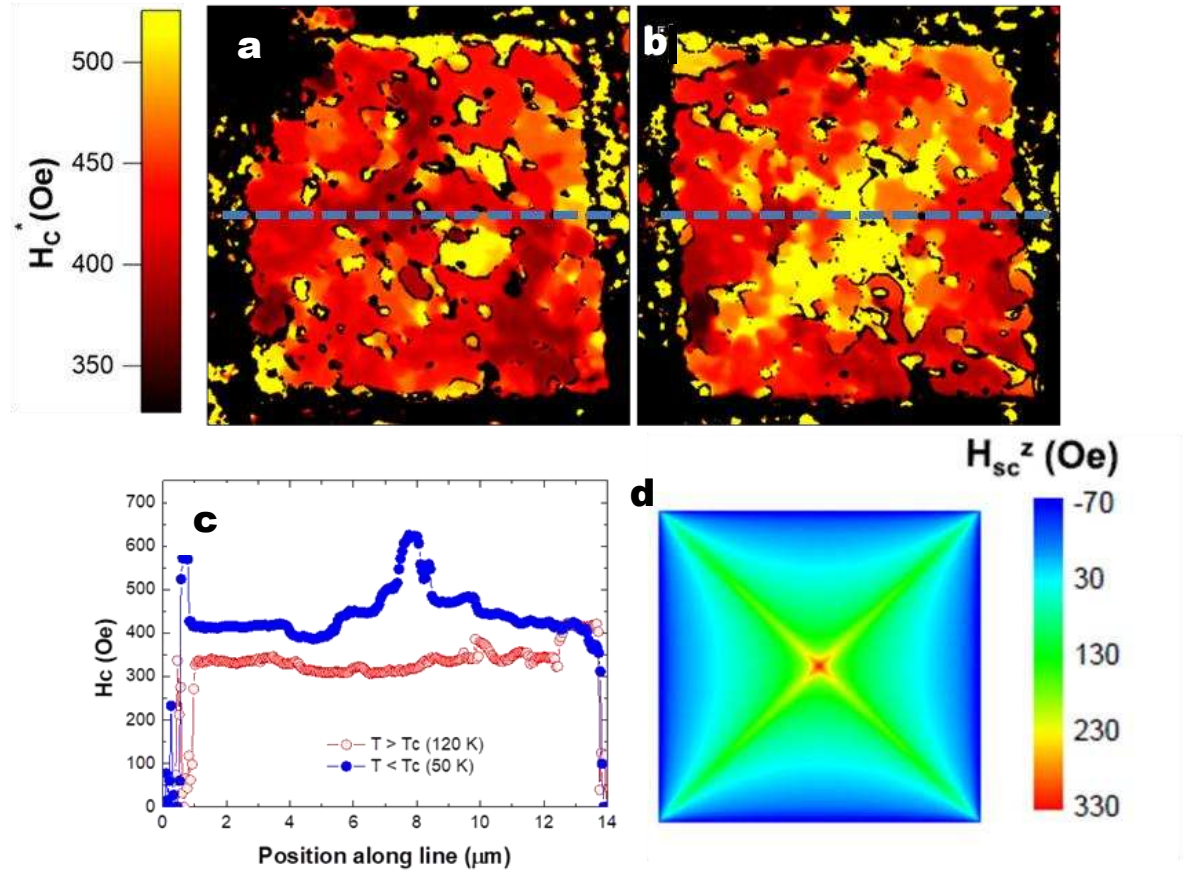


Figura 4.31: Mapas del campo coercitivo efectivo H_c para Co - Pt (a) a 120 K y (b) a 50 K que se obtienen de las imágenes XMCD vs H . (c, d) perfiles de H_c a lo largo de las líneas discontinuas de las imágenes (a) y (b).

coercitivos con la posición. Mientras que la distribución de campos coercitivos a 120 K (Fig. 4.31-a) es bastante isotrópica, a 50 K es claramente anisotrópica (Fig. 4.31-b), con un valor mayor en el centro respecto al valor de H_c en los lados del cuadrado. En el perfil de la Fig. 4.31-c se observa un H_c en la frontera exterior del cuadrado con valores en torno a 400 Oe, lo que supone un aumento de 100 Oe respecto a los valores de H_c a 120 K. Desde el borde del cuadrado hasta el centro a 50 K, H_c aumenta suavemente de manera simétrica 250 Oe, obteniendo un valor cercano a 650 Oe en los puntos centrales. En cierta manera la distribución espacial de los campos coercitivos mayores en la Fig. 4.31-b se asemeja a una X, que es precisamente el patrón de la contribución en z del campo dipolar de las supercorrientes del YBCO. Se reproduce este patrón en la Fig. 4.31-d para su mejor comparación (idéntico al que se muestra en la Fig. 4.2-c).

Para cuantificar y extraer más información de la influencia de las supercorrientes en el comportamiento magnético de la capa de Co-Pt encima del cuadrado superconductor de YBCO, se realiza un análisis por zonas concéntricas, que se presenta en la Fig. 4.32. En el panel (c) se detallan las regiones

de interés o *ROI* definidas, que empiezan en los bordes del cuadrado, región 1, aumentando el número hacia el interior, hasta la región 8 que se corresponde al centro. Las imágenes de la Fig. 4.32-a,b representan, a 50 K y 120 K respectivamente, los ciclos de histéresis de la capa de Co-Pt para las regiones que muestran un comportamiento más diferente, la frontera del cuadrado, región 1 y el centro, región 8. Comparando ambas gráficas, se observa un aumento del campo coercitivo con el *YBCO* superconductor respecto al *YBCO* metálico para la región 1, que es aún mayor en el centro, región 8. De manera análoga, se obtienen los ciclos de todas las posiciones intermedias 2-7, y en la Fig. 4.32-d-e se representan los campos coercitivos efectivos que se extraen de esos ciclos, el campo positivo (puntos en rojo), el negativo (negro) y el promedio (azul). Para el *YBCO* superconductor (50 K, Fig. 4.32-d), el H_c promedio aumenta de manera monótona desde un valor de 425 Oe (850 mA) en el exterior, regiones 1 y 2, hasta un valor cercano a 525 Oe (1050 mA) en el centro del cuadrado, región 8. Estos valores están promediados en toda la zona concéntrica del cuadrado, y por tanto son algo diferentes a los encontrados en los perfiles del mapa bidimensional de H_c de la Fig. 4.31. Para comparar estos valores de campos H_c con los que tendría la multicapa de Co-Pt sin *YBCO* se estima el H_c en regiones fuera del cuadrado superconductor, y el valor se incluye en la gráfica como región 0. A pesar de la asimetría encontrada en el ciclo de histéresis en la región 0, el

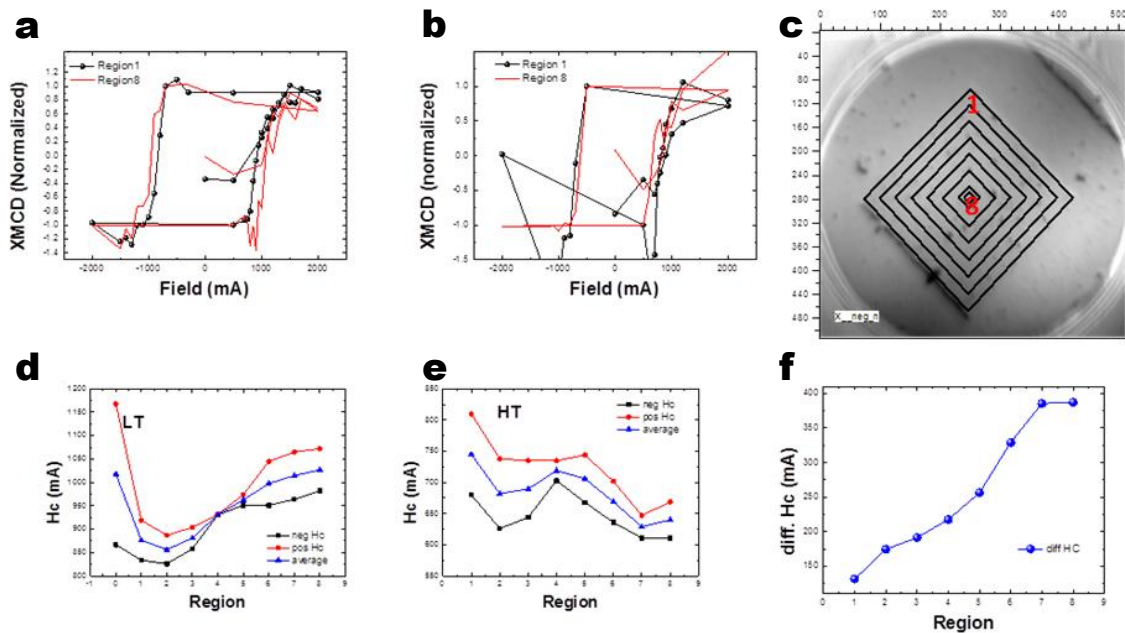


Figura 4.32: Ciclos de histéresis que se obtienen a partir de imágenes *XMCD* a 50 K (a) y 120 K (b) para las regiones 1 (borde) y 8 (centro) que muestran las líneas del panel (c). (c) especifica las 8 regiones concéntricas que se utilizan para analizar los ciclos y campos coercitivos H_c . (d) y (e) H_c calculados de los ciclos de las regiones 1-8 a 50 K y 120 K. La región 0 corresponde al H_c del Co en una zona sin *YBCO*. (f) diferencia en H_c entre 50 K y 120 K para las 8 regiones definidas, del exterior al centro. 1 mA equivale a 0.5 Oe en H_c .

promedio es un valor de H_c muy similar al que se encuentra en el centro del cuadrado, región 8 (Fig. 4.32-d), lo que apunta a que los campos magnéticos producidos por el SC podrían disminuir el H_c efectivo en los bordes. A 120 K y el YBCO no es superconductor (Fig. 4.32-e) y se observa un comportamiento muy diferente, el H_c de la región externa del cuadrado de YBCO se mantiene aproximadamente constante hasta la región central del cuadrado, en la que si acaso disminuye ligeramente.

La variación del campo coercitivo en función de la posición en el interior del cuadrado como consecuencia de las supercorrientes del YBCO puede tener varios orígenes. Para discutirlos se analiza la secuencia magnética de medida considerando dos casos límites en relación a la penetración del campo H en el cuadrado superconductor. Se parte del superconductor en remanencia después de haberlo saturado con un campo $H > 2H^*$. Se tiene, por tanto, supercorrientes en toda la estructura de YBCO, y un perfil positivo de campo lineal según el modelo de Bean. Si se incluye la corrección de los campos de demagnetización se obtiene el perfil que se presenta en la Fig. 4.33, con campo ligeramente negativo en el exterior de la estructura, y ligeramente más positivo de lo que predice el modelo en el centro. A continuación se aplican campos negativos para ver la nucleación de dominios con la magnetización invertida.

La primera situación límite es que el campo magnético aplicado no sea suficiente para tener supercorrientes de apantallamiento en un volumen significativo de la estructura superconductora en remanencia, $H \ll 2H^*$, y por lo tanto apenas afectan al perfil del campo H_{sc} presente antes de aplicar el campo negativo, Fig. 4.33. Este perfil tiene valores negativos en los bordes, y por consiguiente la inversión de la magnetización empezaría en los bordes del cuadrado de YBCO. Pero los dominios invertidos no se propagarían porque el campo H_{sc} toma valores positivos, aumenta hacia el interior y no habría inversión de la imanación.

La otra situación límite es que el campo negativo aplicado sea $H \sim 2H^*$ y se

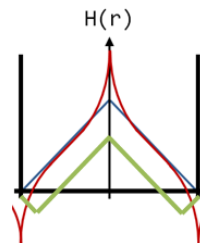


Figura 4.33: Representación esquemática de la componente z del campo magnético H en remanencia en una estructura de YBCO al aplicar un pulso de campo externo $H = 2H^*$. En azul el perfil lineal del modelo de Bean, en rojo el cálculo real en un cuadrado de YBCO incluyendo los campos de demagnetización. En verde se muestra el perfil de campo en una situación intermedia del ciclo de histéresis (ver texto).

invierta el sentido de las supercorrientes en toda la estructura de *YBCO*. En este caso el perfil de campo H_{sc} en remanencia sería el mismo de la Fig. 4.33 pero de signo contrario. Los valores mayores de campo negativo se dan en el centro del cuadrado, y por tanto, se espera que cualquier dominio con imitación invertida se propague inmediatamente a la región central. Este segundo escenario se aleja de los resultados experimentales observados, y por tanto queda descartado.

El caso de aplicar campos negativos $|H \ll H^*|$ es un escenario que explica satisfactoriamente la nucleación de los dominios invertidos en los bordes del cuadrado superconductor que se observan experimentalmente, pero no tiene en cuenta la propagación de esos dominios hacia el centro según se va aumentando el campo negativo externo recorriendo el ciclo de histéresis. Es razonable que el aumento del campo hace que la condición $|H \ll H^*|$ se deje de cumplir, y se empiece a tener una región apreciable de supercorrientes invertidas, y por tanto se da un escenario intermedio entre los dos casos límites comentados anteriormente. Este escenario intermedio se representa en la Fig. 4.33 esquemáticamente de acuerdo al modelo de Bean con el perfil verde, e implica tener una cierta región del exterior del cuadrado con campo negativo, de forma que ahora sí se pueden propagar los dominios con magnetización invertida hacia el centro. Esta región de campo negativo aumenta hacia el centro con el campo aplicado negativo, según se recorre el ciclo de histéresis, y hace que los dominios invertidos se propaguen y finalmente lleguen hasta el centro del cuadrado.

Para corroborar este escenario y conseguir información cuantitativa en relación a la penetración del campo externo para los valores menores del ciclo de histéresis, se propone realizar simulaciones con la geometría del experimento. Estas simulaciones están en proceso y se espera que puedan aclarar el proceso detallado de la variación de H_c con la posición en las estructuras superconductoras recubiertas con una capa con magnetización perpendicular al plano.

4.5. Conclusiones

En este capítulo se presenta el estudio de los estados magnéticos creados por estructuras superconductoras de *YBCO* en una capa ferromagnética depositada encima, al aplicar pulsos de campos H externo perpendiculares.

En un primer bloque se estudia el patrón magnético creado en el plano superior de la estructura de *YBCO*, con ayuda del Py. Se fabrican estructuras híbridas de *YBCO* recubierto por Py con diferentes formas y tamaños mediante el crecimiento por pulverización catódica y la nanofabricación con litografía por haz de electrones. Analizando la estructura magnética con imágenes de *XMCD* en el *PEEM*, se obtiene la impresión del patrón magnético debido

a los campos dipolares creados por las corrientes de apantallamiento del superconductor después de aplicar el pulso de campo magnético perpendicular a la superficie de la muestra. Las estructuras con el Py depositado en forma de una capa continua de 4 nm, muestran la impresión del patrón magnético consistente en cuatro triángulos con magnetizaciones perpendiculares al lado del cuadrado. Este patrón se observa en cuadrados de 20 μm de lado, y sobrevive hasta estructuras de 4 μm de lado. Por debajo de ese tamaño no se resuelve el patrón de dominios triangulares. Las estructuras en forma de discos muestran el mismo comportamiento, la estructura de dominios visibles con 20 μm de diámetro se resuelve hasta un diámetro de 4 μm . Para este tamaño se obtiene la inversión del patrón magnético al invertir el signo del pulso de campo H que genera el patrón en el Py, demostrando el inequívoco origen del patrón magnético en las supercorrientes del *YBCO*. La desaparición del patrón por debajo de 4 μm se asigna a un efecto de la disminución de los campos dipolares por tener supercorrientes de longitud menor, y/o una disminución de la J_c por la mayor cantidad de defectos en el borde de las estructuras de *YBCO* respecto al *bulk* al reducir el tamaño.

El estudio de la estabilidad del patrón magnético en Py aumentando la temperatura hasta 300 K se realiza con dos tipos de estructuras. En el primer caso, con la capa continua de 4 nm de Py, se observa la nucleación de dominios preferentemente en las diagonales de cuadrado cuyo ángulo de rotación de la imanación depende de los dominios cercanos, y la existencia de una pequeña probabilidad de que la rotación de la magnetización cambie la proyección sobre el haz al aumentar la temperatura. El segundo tipo de muestras que se estudian tiene la capa de Py nanoestructurada, solo hay material ferromagnético encima de las estructuras de *YBCO*. Para conseguir mantener las propiedades del Py es necesaria una capa intermedia de Pt intercalada entre ambos materiales. El estudio de estas muestras indica que la señal de *XMCD* comienza a disminuir por encima de 60 K y hasta 90 K, la T_c del superconductor, debido a la disminución del campo dipolar creado por las supercorrientes del *SC* que se asocia a la disminución de la corriente crítica con la temperatura. De 90 a 300 K la señal *XMCD* se mantiene prácticamente constante de manera que el patrón magnético sobrevive a temperatura ambiente. Medidas a las tres semanas confirman la persistencia del patrón en el tiempo.

Se propone un modelo para analizar la pérdida de orientación de la magnetización respecto a su orientación a baja temperatura en el patrón ideal, que se basa en una distribución gaussiana para cada zona del patrón. Este modelo reproduce satisfactoriamente los valores del promedio del ángulo de desviación en patrones obtenidos promediando once imágenes, con ángulos similares en los cuatro triángulos del patrón magnético en el entorno de 22°. Sin embargo, no puede tener en cuenta la pérdida de orientación de la magnetización en función de la proyección sobre el haz incidente, que supone unos ángulos de

desviación para los dominios azul, rojo de $\theta_{DB} = 58^\circ$ (52°) y $\theta_{DR} = 74^\circ$ (52°) mucho mayores que el ángulo obtenido para los dominios blancos $\theta_{DW} = 26^\circ$ (23°) $\pm 4^\circ$ en la muestra de Py continuo (nanoestructurado). Considerando la nucleación de un 10 % de los dominios con proyección opuesta a la de la magnetización a baja temperatura se reproduce esta asimetría en los ángulos de apertura de la magnetización al aumentar la temperatura.

La persistencia del patrón magnético creado a 50 K a temperatura ambiente confirmada en periodos de tiempo de tres semanas resulta muy interesante para las aplicaciones prácticas de esta novedosa metodología de imprimir patrones magnéticos mediante materiales superconductores, por ejemplo en memorias no volátiles.

Como complemento al estudio en el plano, en el segundo bloque del capítulo se estudia el magnetismo que se genera encima de las estructuras de *YBCO* en la dirección perpendicular al plano de la muestra. Para ello se recubre su superficie con una multicapa de cinco repeticiones de Pt (1 nm) \ Co (0.6 nm), y se caracteriza con medidas de *XMCD* y *MFM* su imanación perpendicular al plano. El efecto de las supercorrientes en la dirección perpendicular no es tan evidente como en el plano, no se forma un patrón geométrico bien definido, sino que aparecen diferencias en los campos coercitivos en la superficie de la estructura superconductora en función de la posición. Se realiza un análisis detallado de la magnetización en diferentes estados de los ciclos de histéresis medidos en remanencia en función de la posición y en el mapa 2D de los campos coercitivos efectivos H_c sí parece emerger un patrón relacionado con la componente z del campo dipolar que crean las supercorrientes. Respecto los valores de H_c con el *YBCO* en estado metálico, al disminuir la temperatura a 50 K se da un pequeño aumento (100 Oe) de los campos coercitivos H_c en los bordes de la estructura cuadrada analizada, que ensancha el ciclo de histéresis hasta los 400 Oe. Este valor crece monótonamente al desplazarse hacia el centro de la estructura, donde llega a 650 Oe. La aproximación de aplicar campos negativos $|H \ll H^*|$, teniendo en cuenta el campo de demagnetización del superconductor, explica satisfactoriamente la nucleación de los dominios invertidos en los bordes del cuadrado superconductor. Al aumentar el campo externo negativo siguiendo el ciclo de histéresis y mirar el perfil del campo H_{sc} en remanencia, se crea una cierta región del exterior del cuadrado con campo negativo que va aumentando hacia el centro, de forma que permite la propagación de los dominios con magnetización invertida hacia el centro, explicando los resultados experimentales. Se espera que simulaciones magnéticas aclaren y cuantifiquen la variación de H_c en las estructuras superconductoras recubiertas con una capa con magnetización perpendicular al plano.

Conclusiones generales

En esta tesis doctoral se estudia la generación y manipulación de estados y patrones de espín en nanoestructuras planares de óxidos complejos para aplicación en espintrónica. Se han realizado dos aproximaciones al problema, por un lado se ha tratado la generación de paredes de dominio de 180° en nanohilos de *LSMO*. Por otro lado, se ha estudiado la generación de texturas de espín en un material ferromagnético situado encima de estructuras superconductoras de *YBCO*, al usar las supercorrientes que se generan al apantallar un campo magnético perpendicular al plano de la muestra. Las conclusiones más relevantes que se extren de este trabajo se enumeran a continuación.

Se ha conseguido una ruta de nanofabricación de nanodispositivos de *LSMO* con litografía por haz de electrones basados en un patrón con un nanohilo y dos contactos verticales de mayor anchura. Este dispositivo crea una competición de anisotropías de forma en la cruz entre el nanohilo y el contacto, que sirve de punto de generación de paredes de dominio al ciclar el campo magnético a lo largo del nanohilo. La detallada caracterización del transporte y el magnetismo del mismo dispositivo con un nanohilo de 180 nm y un contacto de 500 nm, ha permitido observar la generación de una pared de domino de 180° en la cruz al invertir la imanación del nanohilo, la cual se propaga y sobrevive en un determinado rango de campos magnéticos del ciclo de histéresis antes de desaparecer. Esta pared de dominio genera una respuesta eléctrica que consiste en la conmutación a un estado de alta resistencia que supone una magnetorresistencia de 2.6 %, en un comportamiento similar a las uniones túnel ferromagnéticas. Simulaciones micromagnéticas del dispositivo reproducen fielmente este proceso de nucleación y propagación de la pared de dominio de 180° . Además, del análisis magnético se ha obtenido un grosor de 120 nm de la pared de dominio de 180° en *LSMO* a 50 K, que está en buen acuerdo con lo reportado en trabajos anteriores.

Se ha optimizado el diseño de dos nanohilos de *LSMO* para conseguir manipular la generación de la pared de dominio de 180° que da origen a la conmutación de la magnetorresistencia. El dispositivo con un hilo de 65 nm, en el límite de la técnica, presenta un transporte eléctrico con el valor de la magnetorresistencia maximizado del 9 % y un aumento del campo de aniquilación de la pared de domino desde 200 Oe a 1660 Oe, que se atribuye a la rugosidad de hilo. El segundo dispositivo tiene un hilo de 200 nm y su transporte eléctrico presenta

una pequeña conmutación de la magnetorresistencia del 0.5 % siguiendo el ciclo de histéresis. Sin embargo, al optimizar la secuencia de variación del campo magnético, incluyendo una doble inversión en un ciclo menor para extender el rango de rotación de la imanación en la cruz, se recupera una conmutación de la magnetorresistencia del 8 %. La manipulación bajo demanda de la magnetorresistencia en nanoestructuras sencillas del medio metal *LSMO* utilizando la competición de anisotropías de forma del nanohilo con un contacto más ancho perpendicular a él, abre una nueva puerta para el diseño de dispositivos avanzados para su aplicación en espintrónica.

Se han generado texturas de espín mediante la impresión en una capa superficial de ferromagnético, del patrón magnético generado por nanoestructuras superconductoras, creadas por litografía por haz de electrones, al apantallar un campo magnético perpendicular. Estas texturas se han estudiado en la superficie, utilizando un material con imanación en el plano característico como el Py, y en la dirección perpendicular al plano, utilizando una capa magnética con la imanación perpendicular, una superred Co-Pt.

Las texturas magnéticas generadas por las supercorrientes del *YBCO* en el recubrimiento continuo de Py están determinadas por la geometría del superconductor, resultando en cuatro dominios triangulares con la imanación orientada a 90° para un cuadrado, o una rotación continua con el ángulo, similar a un *skyrmion*, en el caso de estructuras de tipo disco. Este patrón se observa disminuyendo el tamaño de la estructura superconductora hasta los 4 nm y se puede invertir con el signo del pulso de campo magnético aplicado para generarlo. Las texturas de espín generadas por el superconductor resultan sorprendentemente robustas con la temperatura y se consiguen estabilizar en periodos de tiempo superiores a tres semanas mediante la nanoestructuración de la capa de ferromagnético junto con el superconductor. Se consigue una vía para generar texturas de espín estables a temperatura ambiente mediante materiales superconductores, para diferentes aplicaciones en almacenamiento de información y espintrónica.

El patrón magnético creado encima de las estructuras de *YBCO* en la dirección perpendicular al plano de la muestra provoca diferencias en los campos coercitivos en la superficie de la estructura superconductora en función de la posición. Se produce una disminución del campo coercitivo en la frontera de las estructuras cuadradas del superconductor y un aumento en el centro del cuadrado. Esta variación sigue la componente z del campo dipolar creado por las supercorrientes superpuesta al campo de demagnetización del superconductor, que genera paredes de dominio cerca de los bordes del cuadrado y las propaga hacia el centro del cuadrado conforme se cicla el campo magnético. Simulaciones preliminares de acuerdo al modelo de Bean reproducen el comportamiento observado cuando los campos aplicados son menores que el campo de penetración completa. Con estos resultados se abre la posibilidad de variar los campos

coercitivos de materiales con imanación perpendicular al plano mediante las estructuras superconductoras y la estabilización de paredes de dominio en patrones geométricos definidos por la geometría del *YBCO*.

Referencias

- [1] S.S.P. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas. Magnetic domain-wall race-track memory. *Science*, **320**: 190, (2008).
- [2] N. Vernier, D.A. Allwood, D. Atkinson, M.D. Cooke, and R.P. Cowburn. Domain wall propagation in magnetic nanowires by spin-polarized current injection. *Europhysics Letters*, **65**: 526, (2004).
- [3] A. Mougin, M. Cormier, J.P. Adam, P.J. Metaxas, and J. Ferré. Domain wall mobility, stability and Walker breakdown in magnetic nanowires. *Europhysics Letters*, **78**: 57007, (2007).
- [4] M. Hayashi, L. Thomas, C. Rettner, R. Moriya, Y. Bazaliy, and S. Parkin. Current driven domain wall velocities exceeding the spin angular momentum transfer rate in permalloy nanowires. *Physical Review Letters*, **98**: 037204, (2007).
- [5] Z. Sefrioui, D. Arias, V. Pena, J.E. Villegas, M. Varela, P. Prieto, C. León, J.L. Martinez, and J. Santamaria. Ferromagnetic/superconducting proximity effect in $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ superlattices. *Physical Review B*, **67**: 214511, (2003).
- [6] A.Y. Rusanov, M. Hesselberth, J. Aarts, and A.I. Buzdin. Enhancement of the superconducting transition temperature in Nb/Permalloy bilayers by controlling the domain state of the ferromagnet. *Physical Review Letters*, **93**: 057002, (2004).
- [7] M.J. Van Bael, M. Lange, S. Raedts, V.V. Moshchalkov, A.N. Grigorenko, and S.J. Bending. Local visualization of asymmetric flux pinning by magnetic dots with perpendicular magnetization. *Physical Review B*, **68**: 014509, (2003).
- [8] J. Fritzsche, R.B.G. Kramer, and V.V. Moshchalkov. Visualization of the vortex-mediated pinning of ferromagnetic domains in superconductor-ferromagnet hybrids. *Physical Review B*, **79**: 132501, (2009).
- [9] X. Palermo, N. Reyren, S. Mesoraca, A.V. Samokhvalov, S. Collin, F. Godel, A. Sander, K. Bouzehouane, J. Santamaria, V. Cros, A.I. Buzding, and J.E. Villegas. Tailored flux pinning in superconductor-ferromagnet multilayers with engineered magnetic domain morphology from stripes to skyrmions. *Physical Review Applied*, **13**: 014043, (2020).

-
- [10] N. Del-Valle, S. Agramunt-Puig, A. Sanchez, and C. Navau. Imprinting skyrmions in thin films by ferromagnetic and superconducting templates. *Applied Physics Letters*, **107**: 133103, (2015).
 - [11] A. Palau, S. Valencia, N. Del-Valle, C. Navau, M. Cialone, A. Arora, F. Kronast, D.A. Tennant, X. Obradors, A. Sanchez, and T. Puig. Encoding magnetic states in monopole-like configurations using superconducting dots. *Advanced Science*, **3**: 1600207, (2016).
 - [12] G. Shaw, J. Brisbois, L.B.G.L. Pinheiro, J. Müller, S. Blanco Alvarez, T. Devillers, N.M. Dempsey, J.E. Scheerder, J. Van de Vondel, S. Melinte, P. Vanderbemden, M. Motta, W.A. Ortiz, H. Hasselbach, R.B.G. Kramer, and A.V. Silhanek. Quantitative magneto-optical investigation of superconductor/ferromagnet hybrid structures. *Review of Scientific Instruments*, **89**: 023705, (2018).
 - [13] A.K. Suszka, S. Gliga, P. Warnicke, S. Wintz, S. Saha, K.M. Charipar, H. Kim, P. Wohlhüter, E. Kirk, S. Finizio, J. Raabe, J.D.S. Witt, L.J. Heyderman, and N.S. Bingham. Observation of the out-of-plane magnetization in a mesoscopic ferromagnetic structure superjacent to a superconductor. *Applied Physics Letters*, **113**: 162601, (2018).
 - [14] E. Dagotto. Complexity in strongly correlated electronic systems. *Science*, **309**: 257, (2005).
 - [15] E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo. Colossal magnetoresistant materials: the key role of phase separation. *Physics Reports*, **344**: 1, (2001).
 - [16] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura. Metal-insulator transitions. *Reviews of Modern Physics*, **70**: 1039, (1998).
 - [17] P.A. Lee, N. Nagaosa, and X.G. Wen. Doping a Mott insulator: Physics of high-temperature superconductivity. *Reviews of Modern Physics*, **78**: 17, (2006).
 - [18] Y. Tian, S.R. Bakaul, and T. Wu. Oxide nanowires for spintronics: materials and devices. *Nanoscale*, **4**: 1529, (2012).
 - [19] Y. Tokura. Correlated-electron physics in transition-metal oxides. *Physics Today*, **56**: 50, (2003).
 - [20] Y. Tokura, Y. Tomioka, H. Kuwahara, A. Asamitsu, Y. Moritomo, and M. Kasai. Origins of colossal magnetoresistance in perovskite-type manganese oxides. *Journal of Applied Physics*, **79**: 5288, (1996).
 - [21] E.O. Wollan and W.C. Koehler. Neutron diffraction study of the magnetic properties of the series of perovskite-type compounds $[(1-x)\text{La}, x\text{Ca}]\text{MnO}_3$. *Physical Review*, **100**: 545, (1955).
 - [22] M. Rocci. *Efectos de proximidad en nanoestructuras de oxidos complejos*. PhD thesis, Universidad Complutense de Madrid, (2016).

- [23] Y. Liao. *Practical electron microscopy and database*. Global Sino, (2006).
- [24] C. Zener. Interaction between the d shells in the transition metals. *Physical Review*, **81**: 440, (1951).
- [25] J.H. Park, E. Vescovo, H.J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh, and T. Venkatesan. Direct evidence for a half-metallic ferromagnet. *Nature*, **392**: 794, (1998).
- [26] M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J.P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître, and A. Fert. Nearly total spin polarization in $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ from tunneling experiments. *Applied Physics Letters*, **82**: 233, (2003).
- [27] C.T. Park, J.H. and Chen, S.W. Cheong, W. Bao, G. Meigs, V. Chakarian, and Y.U. Idzerda. Electronic aspects of the ferromagnetic transition in manganese perovskites. *Physical Review Letters*, **76**: 4215, (1996).
- [28] B. Nadgorny, I.I. Mazin, M. Osofsky, R.J. Soulen Jr, P. Broussard, R.M. Stroud, D.J. Singh, V.G. Harris, A. Arsenov, and Y. Mukovskii. Origin of high transport spin polarization in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$: Direct evidence for minority spin states. *Physical Review B*, **63**: 184433, (2001).
- [29] G.M. Müller, J. Walowski, M. Djordjevic, G.X. Miao, A. Gupta, A. V Ramos, K. Gehrke, V. Moshnyaga, K. Samwer, J. Schmalhorst, A. Thomas, A. Hütten, G. Reiss, J.S. Moodera, and M. Münzenberg. Spin polarization in half-metals probed by femtosecond spin excitation. *Nature Materials*, **8**: 56, (2009).
- [30] S. Yunoki, J. Hu, A.L. Malvezzi, A. Moreo, N. Furukawa, and E. Dagotto. Phase separation in electronic models for manganites. *Physical Review Letters*, **80**: 845, (1998).
- [31] J. Burgy, A. Moreo, and E. Dagotto. Relevance of cooperative lattice effects and stress fields in phase-separation theories for cmr manganites. *Physical Review Letters*, **92**: 097202, (2004).
- [32] S Jin, Th H Tiefel, M McCormack, RA Fastnacht, R. Ramesh, and LH Chen. Thousandfold change in resistivity in magnetoresistive La-Ca-Mn-O films. *Science*, **264**: 413, (1994).
- [33] J.M. De Teresa, M.R. Ibarra, P.A. Algarabel, C. Ritter, C. Marquina, J. Blasco, J. Garcia, A.I. del Moral, and Z. Arnold. Evidence for magnetic polarons in the magnetoresistive perovskites. *Nature*, **386**: 256, (1997).
- [34] I.O. Troyanchuk. Phase transitions in $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **75**: 132, (1992).
- [35] M. Jaime, M.B. Salamon, M. Rubinstein, R.E. Treece, J.S. Horwitz, and D.B. Chrisey. High-temperature thermopower in $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ films: evidence for polaronic transport. *Physical Review B*, **54**: 11914, (1996).

-
- [36] R.H. Heffner, L.P. Le, M.F. Hundley, J.J. Neumeier, G.M. Luke, K. Kojima, B. Nachumi, Y.J. Uemura, D.E. MacLaughlin, and S.W. Cheong. Ferromagnetic ordering and unusual magnetic ion dynamics in $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. *Physical Review Letters*, **77**: 1869, (1996).
- [37] G. Allodi, R. De Renzi, G. Guidi, F. Licci, and M.W. Pieper. Electronic phase separation in lanthanum manganites: evidence from ^{55}Mn NMR. *Physical Review B*, **56**: 6036, (1997).
- [38] J.W. Lynn, R.W. Erwin, J.A. Borchers, Q. Huang, A. Santoro, J.L. Peng, and Z.Y. Li. Unconventional ferromagnetic transition in $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$. *Physical review letters*, **76**: 4046, (1996).
- [39] M. Hennion, F. Moussa, G. Biotteau, J. Rodriguez-Carvajal, L. Pinsard, and A. Revcolevschi. Liquidlike spatial distribution of magnetic droplets revealed by neutron scattering in $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$. *Physical Review Letters*, **81**: 1957, (1998).
- [40] S. Yoon, H.L. Liu, G. Schollerer, S.L. Cooper, P.D. Han, D.A. Payne, S.W. Cheong, and Z. Fisk. Raman and optical spectroscopic studies of small-to-large polaron crossover in the perovskite manganese oxides. *Physical Review B*, **58**: 2795, (1998).
- [41] E.C. Stoner and E.P. Wohlfarth. A mechanism of magnetic hysteresis in heterogeneous alloys. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A - Mathematical and Physical Sciences*, **240**: 599, (1948).
- [42] Z.H. Wang, G. Cristiani, and H.U. Habermeier. Uniaxial magnetic anisotropy and magnetic switching in $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ thin films grown on vicinal SrTiO_3 (100). *Applied Physics Letters*, **82**: 3731, (2003).
- [43] M. Mathews, F.M. Postma, J.C. Lodder, R. Jansen, G. Rijnders, and D.H.A. Blank. Step-induced uniaxial magnetic anisotropy of $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ thin films. *Applied Physics Letters*, **87**: 242507, (2005).
- [44] N.F. Mott. The electrical conductivity of transition metals. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A - Mathematical and Physical Sciences*, **153**: 699, (1936).
- [45] F. N. Araneda. *Síntesis y caracterización magnetoeléctrica de pseudo válvulas de espín de Pd/Co con anisotropía magnética perpendicular*. PhD thesis, Universidad de Santiago de Chile, (2016).
- [46] J. Volger. Further experimental investigations on some ferromagnetic oxidic compounds of manganese with perovskite structure. *Physica*, **20**: 49, (1954).

- [47] A.M. Haghiri-Gosnet and J.P. Renard. Cmr manganites: physics, thin films and devices. *Journal of Physics D: Applied Physics*, **36**: R127, (2003).
- [48] Y. Tokura and Y. Tomioka. Colossal magnetoresistive manganites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **200**: 1, (1999).
- [49] Y. Tokura. Critical features of colossal magnetoresistive manganites. *Reports on Progress in Physics*, **69**: 797, (2006).
- [50] J.M.D. Coey, M. Viret, and S. Von Molnar. Mixed-valence manganites. *Advances in Physics*, **48**: 167, (1999).
- [51] M.B. Salamon and M. Jaime. The physics of manganites: Structure and transport. *Reviews of Modern Physics*, **73**: 583, (2001).
- [52] A.P. Ramirez. Colossal magnetoresistance. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **9**: 8171, (1997).
- [53] M. Ziese. Extrinsic magnetotransport phenomena in ferromagnetic oxides. *Reports on Progress in Physics*, **65**: 143, (2002).
- [54] K.K. Choi, T. Taniyama, and Y. Yamazaki. Strain-induced anisotropic low-field magnetoresistance of La-Sr-Mn-O thin films. *Journal of Applied Physics*, **90**: 6145, (2001).
- [55] K.K. Choi, T. Taniyama, and Y. Yamazaki. Low-field magnetoresistive properties of polycrystalline and epitaxial perovskite manganite films. *Applied Physics Letters*, **71**: 1124, (1997).
- [56] W. Thomson. On the electrodynamic qualities of metals: Effects of magnetization on the electric conductivity of nickel and of iron. *Proceedings of the Royal Society of London*, **8**: 546, (1857).
- [57] A.P. Malozemoff. Anisotropic magnetoresistance of amorphous and concentrated polycrystalline iron alloys. *Physical Review B*, **32**: 6080, (1985).
- [58] A. Fert and I.A. Campbell. Two-current conduction in nickel. *Physical Review Letters*, **21**: 1190, (1968).
- [59] I.A. Campbell. Hall effect and resistivity anisotropy in ni alloys. *Physical Review Letters*, **24**: 269, (1970).
- [60] J.B. Yau, X. Hong, A. Posadas, C.H. Ahn, W. Gao, E. Altman, Y. Bason, L. Klein, M. Sidorov, and Z. Krivokapic. Anisotropic magnetoresistance in colossal magnetoresistive $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ thin films. *Journal of Applied Physics*, **102**: 103901, (2007).
- [61] J. Bardeen, L.N. Cooper, and J.R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Physical Review*, **108**: 1175, (1957).

-
- [62] H.F. Hess, R.B. Robinson, R.C. Dynes, J.M. Valles Jr., and J.V. Waszczak. Scanning-Tunneling-Microscope observation of the Abrikosov flux lattice in the density of states near and inside a fluxoid. *Physical Review Letters*, **62**: 214, (1989).
 - [63] J.G. Bednorz and K.A. . Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. *Zeitschrift fur Physik B, Condensed Matter*, **64**: 189, (1986).
 - [64] V. Rouco. *Controlling vortex pinning and dynamics of nanostructured YBCO thin films grown by chemical solution deposition*. PhD thesis, Universitat Autònoma de Barcelona, (2014).
 - [65] V. Breit, P. Schweiss, R. Hauff, H. Wuhl, H. Claus, H. Rietschel, A. Erb, and G. Muller-Vogt. Evidence for chain superconductivity in near-stoichiometric $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ single crystals. *Physical Review B*, **52**: R15727, (1995).
 - [66] G. Blatter, M.V. Feigelman, V.B. Geshkenbein, A.I. Larkin, and V.M. Vinokur. Vortices in high-temperature superconductors. *Review of Modern Physics*, **66**: 1125, (1994).
 - [67] F. Bouquet, C. Marcenat, E. Steep, R. Calemczuk, W.K. Kwok, U. Welp, G.W. Crabtree, R.A. Fisher, N.E. Phillips, and A. Schilling. An unusual phase transition to a second liquid vortex phase in the superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. *Nature*, **411**: 448, (2001).
 - [68] M.P. A. Fisher. Vortex-glass superconductivity: A possible new phase in bulk high- T_c oxides. *Physical Review Letters*, **62**: 1415, (1989).
 - [69] D.S. Fisher, M.P.A. Fisher, and D.A. Huse. Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors. *Physical Review B*, **43**: 130, (1991).
 - [70] D.X. Chen, C. Prados, E. Pardo, A. Sanchez, and A. Hernando. Transverse demagnetizing factors of long rectangular bars: I. analytical expressions for extreme values of susceptibility. *Journal of Applied Physics*, **91**: 5254, (2002).
 - [71] E. Pardo, A. Sanchez, and D.X. Chen. Transverse demagnetizing factors of long rectangular bars: II. numerical calculations for arbitrary susceptibility. *Journal of Applied Physics*, **91**: 5260, (2002).
 - [72] C.P. Bean. Magnetization of hard superconductors. *Physical Review Letters*, **8**: 250, (1962).
 - [73] C.P. Bean. Magnetization of high-field superconductors. *Reviews of Modern Physics*, **36**: 31, (1964).
 - [74] A. Sanchez and C. Navau. Magnetic properties of finite superconducting cylinders. i. uniform applied field. *Physical Review B*, **64**: 214506, (2001).

- [75] E. Zeldov, J.R. Clem, M. McElfresh, and M. Darwin. Magnetization and transport currents in thin superconducting films. *Physical Review B*, **49**: 9802, (1994).
- [76] O. Tchernyshyov. Freedom for the poles. *Nature*, **451**: 22, (2008).
- [77] C. Castelnovo, R. Moessner, and S.L. Sondhi. Magnetic monopoles in spin ice. *Nature*, **451**: 42, (2008).
- [78] D.J.P. Morris, D.A. Tennant, S.A. Grigera, B. Klemke, C. Castelnovo, R. Moessner, C. Czternasty, M. Meissner, K.C. Rule, J.U. Hoffmann, K. Kiefer, S. Gerischer, D. Slobinsky, and R.S. Perry. Dirac strings and magnetic monopoles in the spin ice $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. *Science*, **326**: 411, (2009).
- [79] D.E. Ladak, S. and Read, G.K. Perkins, L.F. Cohen, and W.R. Branford. Direct observation of magnetic monopole defects in an artificial spin-ice system. *Nature Physics*, **6**: 359, (2010).
- [80] E. Mengotti, L.J. Heyderman, A.F. Rodríguez, F. Nolting, R.V. Hügli, and H.B. Braun. Real-space observation of emergent magnetic monopoles and associated dirac strings in artificial kagome spin ice. *Nature Physics*, **7**: 68, (2011).
- [81] J.P. Morgan, A. Stein, S. Langridge, and C.H. Marrows. Thermal ground-state ordering and elementary excitations in artificial magnetic square ice. *Nature Physics*, **7**: 75, (2011).
- [82] E. Saitoh, T. Miyajima, H. Yamaoka, and G. Tatara. Current-induced resonance and mass determination of a single magnetic domain wall. *Nature*, **432**: 203, (2004).
- [83] L. Thomas, M. Hayashi, R. Moriya, C. Rettner, and S. Parkin. Topological repulsion between domain walls in magnetic nanowires leading to the formation of bound states. *Nature Communications*, **3**: 810, (2012).
- [84] P.F. Fewster. *X-Ray Scattering from Semiconductors*. World Scientific Publishing Co. Pe. Ltd., London, (2003).
- [85] A. Guinier. *X-Ray Diffraction: In Crystals, Imperfect Crystals, and Amorphous Bodies*. Dover Publications, (1994).
- [86] E.E. Fullerton, I.K. Schuller, H. Vanderstraeten, and Y. Bruynseraede. Structural refinement of superlattices from X-ray diffraction. *Physical Review B*, **45**: 9292, (1992).
- [87] O. Nakamura, E.E. Fullerton, J. Guimpel, and I.K. Schuller. High t_c thin films with roughness smaller than one unit cell. *Applied Physics Letters*, **60**: 120, (1992).
- [88] A. Vilalta-Clemente, K. Gloystein, and N. Frangis. Principles of atomic force microscopy (AFM). *Proceedings of Physics of Advanced Materials Winter School*, (2008).

-
- [89] A. Mahmoudzadeh. *Dual ion engine. Design & development*. PhD thesis, The University of Sydney, (2015).
- [90] Namaste Kadapa. Parts of a scanning electron microscope, (2011).
- [91] *Software Operation Manual - Raith GmbH*, (2007).
- [92] *Software Manual SmartSEMÂ® V05.06 Operating software for Scanning Electron Microscopes - Carl Zeiss Microscopy GmbH*, (2012).
- [93] *Software Reference Manual - Raith GmbH*, (2007).
- [94] Bruker. Magnetic force microscopy - mfm, (2011).
- [95] J.A. Galvis, E. Herrera, I. Guillamón, J. Azpeitia, R.F. Luccas, C. Munuera, M. Cuenca, J.A. Higuera, N. Díaz, M. Pazos, M. Garcia-Hernandez, A. Buendia, S. Vieira, and H. Suderow. Three axis vector magnet set-up for cryogenic scanning probe microscopy. *Review of Scientific Instruments*, **86**: 013706, (2015).
- [96] M. Abbate, Frank M.F. de Groot, J.C. Fuggle, A. Fujimori, O. Strebel, F. Lopez, M. Domke, G. Kaindl, G.A. Sawatzky, M. Takano, et al. Controlled-valence properties of $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{FeO}_3$ and $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ studied by soft-x-ray absorption spectroscopy. *Physical Review B*, **46**: 4511, (1992).
- [97] F. de Groot and J. Vogel. *Neutron and X-ray Spectroscopy. Chapter: Fundamentals of X-ray Absorption and Dichroism: The Multiplet Approach*. Springer, (2006).
- [98] G. Van der Laan and I.W. Kirkman. The 2p absorption spectra of 3d transition metal compounds in tetrahedral and octahedral symmetry. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **4**: 4189, (1992).
- [99] C. T. Chen, Y.U. Idzerda, H.-J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin, and F. Sette. Experimental confirmation of the x-ray magnetic circular dichroism sum rules for iron and cobalt. *Physical review letters*, **75**: 152, (1995).
- [100] J.L. Erskine and E.A. Stern. Calculation of the M_{23} magneto-optical absorption spectrum of ferromagnetic nickel. *Physical Review B*, **12**: 5016, (1975).
- [101] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, and G. Materlik. Absorption of circularly polarized X rays in iron. *Physical Review Letters*, **58**: 737, (1987).
- [102] W. Kuch. *Magnetic imaging*. Springer, (2006).
- [103] C. M. Schneider and G. Schönhense. Investigating surface magnetism by means of photoexcitation electron emission microscopy. *Reports on Progress in Physics*, **65**: 1785, (2002).

- [104] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, and G. Materlik. Absorption of circularly polarized x rays in iron. *Physical Review Letters*, **58**: 737, (1987).
- [105] S. Valencia. *Element-selective study of charge localization processes in manganite thin flms*. PhD thesis, Universität Postdam, (2006).
- [106] R. Nakajima, J. Stöhr, and Y. U. Idzerda. Electron-yield saturation effects in l-edge x-ray magnetic circular dichroism spectra of fe, co, and ni. *Physical Review B*, **59**: 6421, (1999).
- [107] T. J. Regan, H. Ohldag, C. Stamm, F. Nolting, J. Lüning, J. Stöhr, and R. L. White. Chemical effects at metal/oxide interfaces studied by x-ray-absorption spectroscopy. *Physical Review B*, **64**: 214422, (2001).
- [108] W. Swiech, G.H. Fecher, Ch. Ziethen, O. Schmidt, G. Schönhense, K. Grzelakowski, C. M. Schneider, R. Frömter, H. P. Oepen, and J. Kirschner. Recent progress in photoemission microscopy with emphasis on chemical and magnetic sensitivity. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, **84**: 171, (1997).
- [109] W. Kuch, R. Frömter, J. Gilles, D. Hartmann, Ch. Ziethen, C. M. Schneider, G. Schönhense, W. Swiech, and J. Kirschner. Element-selective magnetic imaging in exchange-coupled systems by magnetic photoemission microscopy. *Surface Review and Letters*, **5**: 1241, (1998).
- [110] S. Anders, H. A Padmore, R. M. Duarte, T. Renner, T. Stammel, A. Scholl, M. R. Scheinfein, J. Stöhr, L. Séve, and B. Sinkovic. Photoemission electron microscope for the study of magnetic materials. *Review of Scientific Instruments*, **70**: 3973, (1999).
- [111] O. Philips Gloeilampenfabrieken. A method of measuring specific resistivity and hall effect of discs of arbitrary shape. *Philips Res. Rep*, **13**: 1, (1958).
- [112] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F.N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001) Fe / (001) Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, **61**: 2472, (1988).
- [113] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical review B*, **39**: 4828, (1989).
- [114] C. Chappert, A. Fert, and F.N. Van Dau. *Nanoscience And Technology: A Collection of Reviews from Nature Journals. Chapter: The emergence of spin electronics in data storage*. World Scientific, (2010).
- [115] K. Olejnik, M.H.S. Owen, V. Novák, J. Mašek, A.C. Irvine, J. Wunderlich, and T. Jungwirth. Enhanced annealing, high Curie temperature,

- and low-voltage gating in (Ga, Mn) As: A surface oxide control study. *Physical Review B*, **78**: 054403, (2008).
- [116] E.E. Fullerton and I.K. Schuller. The 2007 Nobel Prize in physics: magnetism and transport at the nanoscale, (2007).
 - [117] F. Gaucher, A. Pautrat, S. Autier-Laurent, C. David, L.E. Calvet, P. Lecoeur, and A.M. Haghiri-Gosnet. Fabrication of metallic oxide nanowires. *Microelectronic engineering*, **86**: 820, (2009).
 - [118] R. O’Handley. *MODERN MAGNETIC MATERIALS. Principles and Applications*. Wiley-Interscience, (2000).
 - [119] O. Nakamura, E.E. Fullerton, J. Guimpel, and I.K. Schuller. High T_c thin films with roughness smaller than one unit cell. *Applied Physics Letters*, **60**: 120, (1992).
 - [120] F.Y. Bruno, J. Garcia-Barriocanal, M. Varela, N.M. Nemes, P. Thakur, J.C. Cezar, N.B. Brookes, A. Rivera-Calzada, M. Garcia-Hernandez, C. Leon, and J. Santamaria. Electronic and magnetic reconstructions in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ heterostructures: a case of enhanced inter-layer coupling controlled by the interface. *Physical Review Letters*, **106**: 147205, (2011).
 - [121] A. Vansteenkiste, J. Leliaert, M. Dvornik, M. Helsen, F. Garcia-Sanchez, and B. Van Waeyenberge. The design and verification of MuMax3. *AIP Advances*, **4**: 107133, (2014).
 - [122] T. Arnal, A.V. Khvalkovskii, M. Bibes, B. Mercey, Ph. Lecoeur, and A-M Haghiri-Gosnet. Electronic properties of domain walls in $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$: Magnetotransport measurements on a nanopatterned device. *Physical Review B*, **75**: 220409, (2007).
 - [123] J. Wolfman, A.M. Haghiri-Gosnet, B. Raveau, C. Vieu, E. Cambril, A. Cornette, and H. Launois. Large domain wall magnetoresistance up to room temperature in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ bridges with nanoconstrictions. *Journal of Applied Physics*, **89**: 6955, (2001).
 - [124] N.D. Mathur, P.B. Littlewood, N.K. Todd, S.P. Isaac, B-S Teo, D-J Kang, E.J. Tarte, Z.H. Barber, J.E. Evetts, and M.G. Blamire. Resistance of a domain wall in $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. *Journal of Applied physics*, **86**: 6287, (1999).
 - [125] I.F. Lyuksyutov and V.L. Pokrovsky. Ferromagnet-superconductor hybrids. *Advances in Physics*, **54**: 67, (2005).
 - [126] C. Joss, J. Albrecht, H. Kuhn, H. Kronmüller, and S. Leonhardt. Rep. on prog. *Phys*, **65**: 651, (2002).

- [127] J. Simmendinger, S. Ruoss, C. Stahl, M. Weigand, J. Gräfe, G. Schütz, and J. Albrecht. Transmission X-ray microscopy at low temperatures: Irregular supercurrent flow at small length scales. *Physical Review B*, **97**: 134515, (2018).
- [128] C. Stahl, S. Ruoff, M. Weigand, M. Bechtel, G. Schütz, and J. Albrecht. Low temperature X-ray imaging of magnetic flux patterns in high temperature superconductors. *Journal of Applied Physics*, **117**: 17D109, (2015).
- [129] G.M. De Luca, G. Ghiringhelli, M.M. Sala, S. Di Matteo, M.W. Haverkort, H. Berger, V. Bisogni, J.C. Cezar, N.B. Brookes, and M. Salluzzo. Weak magnetism in insulating and superconducting cuprates. *Physical Review B*, **82**: 214504, (2010).
- [130] M. Varela, W. Grogger, D. Arias, Z. Sefrioui, C. León, C. Ballesteros, K. M. Krishnan, and J. Santamaría. Direct evidence for block-by-block growth in high-temperature superconductor ultrathin films. *Physical Review Letters*, **86**: 5156, (2001).
- [131] S. Bruck and J. Albrecht. Experimental evidence of the dominant role of low-angle grain boundaries for the critical current density in epitaxially grown $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin films. *Physical Review B*, **71**: 174508, (2005).
- [132] J. Albrecht, M. Djupmyr, and S. Brück. Universal temperature scaling of flux line pinning in high-temperature superconducting thin films. *Journal of Physics: Condensed Matter*, **19**: 216211, (2007).
- [133] C. Stahl, P. Audehm, J. Gräfe, S. Ruoff, M. Weigand, M. Schmidt, S. Treiber, M. Bechtel, E. Goering, G. Schütz, and J. Albrecht. Detecting magnetic flux distributions in superconductors with polarized X rays. *Physical Review B*, **90**: 104515, (2014).

Anexo

Artículos revistas científicas

- J. Tornos, F. Gallego, S. Valencia, Y. H. Liu, V. Rouco, V. Lauter, R. Abrudan, C. Luo, H. Ryll, Q. Wang, D. Hernández-Martín, G. Orfila, M. Cabero, F. Cuéllar, D. Arias, F. J. Mompeán, M. García-Hernández, F. Radu, T. R. Charlton, A. Rivera-Calzada, Z. Sefrioui, S. G. E. te Velthuis, C. León and J. Santamaría. Ferroelectric control of interface spin filtering in multiferroic tunnel junctions. *Physical Review Letters*, **122**: 037601, (2019).
- F. A. Cuéllar, D. Hernández-Martín, J. Tornos, F. Gallego, G. Orfila, A. Rivera-Calzada, Z. Sefrioui, C. León and J. Santamaría. Interface magnetism in $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ epitaxial heterostructures. *Physica Status Solidi (a)*, **215**: 1800265, (2018).
- Y. Niu, R. Frisenda, S. A. Svatek, G. Orfila, F. Gallego, P. Gant, N. Agraït, C. León, A. Rivera-Calzada, D. Pérez De Lara, J. Santamaría and A. Castellanos. Photodiodes based in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ /single layer MoS_2 hybrid vertical heterostructures. *2D Materials*, **4**: 034002, (2017).

Cursos y conferencias

- G. Orfila et al. **GEFES 2018** (Valencia, España, 2018). – Posrer – *Nucleation of domain wall in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ nanowires*.
- G. Orfila et al. **Nanolito 2017** (Madrid, España, 2017) – Poster – *Domain wall magnetoresistance in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ nanowires*.
- G. Orfila et al. **ISOE 2017** (Cargesse, Corsica, 2017) – Poster – *Examples of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ and $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ magnetic nanostructures*.
- G. Orfila et al. **GEFES 2016** (Cuenca, España 2016) – Poster – *Proximity driven commensurate pinning in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ through all-oxide magnetic nanostructures*.

Breves estancias en el extranjero

- *Stabilization of topologically unstable states by means of SC/FM interactions* - **BESSY II**. Berlín. Junio 2016. Técnica: SPEEM, X-Ray absorption and spectroscopy. Duración: 1 semana.
- *Controlling magnetic groundstates at correlated oxide interfaces by induced oxygen vacancy profiles* - **BESSY II**. Berlín. Noviembre 2016. Técnica: SPEEM, X-Ray absorption and spectroscopy. Duración: 1 semana.
- *Controlling magnetic groundstates at correlated oxide interfaces by induced oxygen vacancy profiles* - **BESSY II**. Berlín. Diciembre 2016. Técnica: VEKMAG. Duración: 1 semana.
- *Tailoring magnetic textures with superconductors: Hybrid superconductor/ferromagnetic nanostructures for future spintronic applications* - **BESSY II**. Berlín. Mayo 2017. Técnica: SPEEM, X-Ray absorption and spectroscopy. Duración: 1 semana.
- *Manipulation of magnetic states at oxide interfaces by ferroelectric polarization* - **BESSY II**. Berlín. Octubre 2017. Técnica: SPEEM, X-Ray absorption and spectroscopy. Duración: 1 semana.
- *Superconducting ferromagnetic interactions as seed for local imprint of non-trivial spin topologies.* - **BESSY II**. Berlín. Enero 2018. Técnica: SPEEM, X-Ray absorption and spectroscopy. Duración: 1 semana.
- *Superconducting ferromagnetic interactions as seed for local imprint of non-trivial spin topologies.* . - **BESSY II**. Berlín. Julio 2018. Técnica: SPEEM, X-Ray absorption and spectroscopy. Duración: 1 semana.